(19)日本国特許庁 (JP)

# (12) 公表特許公報(A)

## (11)特許出顧公表番号

# 特表平10-511322

(43)公表日 平成10年(1998)11月4日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	F I
B 3 2 B 27/36		B 3 2 B 27/36
7/02	103	7/02 1 0 3
G02B 5/08		G 0 2 B 5/08 A
5/30		5/30
		審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 87 頁)
(21) 出願番号	<b>特願平</b> 8-519950	(71)出願人 ミネソタ マイニング アンド マニュフ
(86) (22)出顧日	平成7年(1995)12月19日	ァクチャリング カンパニー
(85)翻訳文提出日	平成9年(1997)6月16日	アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427,
(86)国際出願番号	PCT/US95/16555	セント ポール, ポスト オフィス ポッ
(87)国際公開番号	WO96/19347	クス 33427, スリーエム センター
(87)国際公開日	平成8年(1996)6月27日	(72)発明者 ジョンザ,ジェイムズ エム.
(31)優先権主張番号	08/359, 436	アメリカ合衆国, ミネソタ 55133-3427,
(32)優先日	1994年12月20日	セント ポール, ポスト オフィス ポッ
(33)優先権主張国	米国(US)	クス 33427
(31)優先権主張番号	08/402,041	(74)代理人 弁理士 石田 敬 (外3名)
(32)優先日	1995年3月10日	
(33)優先権主張国	米国(US)	
	· .	最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 多層光学フィルム

## (57)【要約】

復屈折光学フィルム (10、12、14) は、非常に大きいかまたは存在しないブルースター角 (p偏光の反射率がゼロになる角度) を有する。これにより、p偏光に対する反射率が入射角とともにゆっくりと減少するか、入射角に依存しないか、または入射角が直角から離れるにつれて増大する多層の鏡および偏光子の作製が可能となる。その結果、広い帯域幅にわたって高い反射率(両方の偏光面を対象とし、入射方向は鏡の場合には任意、偏光子の場合には所定の方向とする)を有する多層フィルム (10) を作製できるようになる。

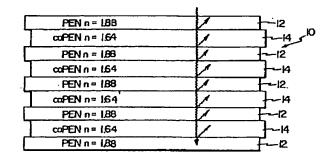


Fig. 1b

#### 【特許請求の範囲】

- 1. (A) 正応力光学係数を有する結晶質ナフタレンジカルボン酸ポリエステルから成り、平均厚さが0.5ミクロン以下である層と、
- (B) 平均厚さが0.5ミクロン以下の所定の第2のポリマーの層と、を含んでなる多層ポリマーフィルム。
- 2. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルが前記第2のポリマーよりも大きい正の複屈折を有する請求項1に記載のフィルム。
- 3. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルの前記層および前記第2のポリマーの前記層が直接隣接交互層である請求項1に記載のフィルム。
- 4. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルの前記層および前記第2のポリマーの前記層が良好な層間接着を有する請求項3に記載のフィルム。
- 5. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルの前記層および前記第2のポリマーの前記層のそれぞれが少なくとも50個存在する請求項1に記載のフィルム。
  - 6. 前記フィルムが少なくとも一方向に延伸された請求項1に記載のフィルム
- 7. 前記フィルムが少なくとも一方向に、かつ、該方向の未延伸寸法の少なくとも2倍に延伸された請求項6に記載のフィルム。
- 8. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルの前記層が、前記第2のポリマーの前記層よりも、少なくとも一つの面内軸に関して高い屈折率を有する請求項7に記載のフィルム。
  - 9. 前記高い屈折率が少なくとも0.05より高い請求項8に記載のフィルム。
  - 10. 前記高い屈折率が少なくとも0.10より高い請求項8に記載

#### のフィルム。

- 11. 前記高い屈折率が少なくとも0.20より高い請求項8に記載のフィルム。
- 12. 前記フィルムが少なくとも二つの方向に延伸された請求項1に記載のフィルム。
- 13. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルがポリ(エチレンナフタレート)である請求項1に記載のフィルム。

- 14. 前記ナフタレンジカルボン酸ポリエステルがナフタレート単位およびテレフタレート単位を含むコポリマーである請求項1に記載のフィルム。
  - 15. 前記第2のポリマーがポリエステルである請求項1に記載のフィルム。
- 16. 前記第2のポリマーがナフタレン単位を含む請求項15に記載のフィルム。
- 17. 前記第2のポリマーがナフタレート単位およびテレフタレート単位を含むコポリマーである請求項15に記載のフィルム。
  - 18. 前記第2のポリマーがポリスチレンである請求項1に記載のフィルム。
- 19. 前記第2のポリマーがフルオロポリマーである請求項1に記載のフィル・ム。
- 20. 前記第2のポリマーがポリアクリレート、ポリメタクリレート、または ポリオレフィンである請求項1に記載のフィルム。
- 21. 前記フィルムが、少なくとも一つの偏光面に対して、少なくとも100nmの幅の帯域にわたり少なくとも50%の平均反射率を有する請求項1に記載のフィルム。
  - 22. 請求項1に記載のフィルムを含んでなる製品。
  - 23. 多層ポリマーフィルムであって、

1 =

- (A) 平均厚さが0.5ミクロン以下である結晶質ポリエステルの層と、
- (B) 平均厚さが0.5ミクロン以下の所定の第2のポリマーの層と、を含み、 前記フィルムが少なくとも一方向に、かつ、該方向の未延伸寸法の少なくとも 2倍に延伸されてなる多層ポリマーフィルム。
- 24. 前記ポリエステルがポリ(アルキレンテレフタレート)である請求項2 3に記載のフィルム。
  - 25. 前記第2のポリマーがポリエステルである請求項23に記載のフィルム
- 26. 前記ポリエステルの層および前記第2のポリマーの層が直接隣接交互層である請求項23に記載のフィルム。
  - 27. 前記ポリエステルの層および前記第2のポリマーの層が良好な層間接着

を有する請求項26に記載のフィルム。

- 28. 前記ポリエステルの層および前記第2のポリマーの層のそれぞれが少なくとも50個存在する請求項23に記載のフィルム。
- 29. 前記フィルムが少なくとも二つの方向に延伸された間求項23に記載の 7ィルム。
- 30. 前記フィルムが、少なくとも一つの偏光面に対して、少なくとも100nm の幅の帯域にわたり少なくとも50%の平均反射率を有する請求項23に記載のフィルム。
  - 31. 請求項23に記載のフィルムを含んでなる製品。

### 【発明の詳細な説明】

多層光学フィルム

#### 背景

£.

本発明は、例えば偏光子および/または鏡として有用な光学フィルムに関する

多層ポリマー膜に基づく光反射装置は公知である。こうした装置としては、例 えば、異なる屈折率を有する層を含んでなる交互ポリマー層から作製された偏光 子が挙げられる。

#### 概要

本明細書中に記載されている複屈折光学フィルムの光学特性およびデザインを 考慮すると、ブルースター角(p偏光の反射率がゼロになる角度)が非常に大き いかまたは存在しない多重積層を作製することが可能となる。これにより、p偏 光に対する反射率が入射角とともにゆっくりと減少するか、入射角に依存しない か、または入射角が直角から離れるにつれて増大する多層の鏡および偏光子の作 製が可能となる。その結果、広い帯域幅にわたって高い反射率(s偏光および p 偏光の両方を対象とし、入射方向は鏡の場合には任意、偏光子の場合には所定の 方向とする)を有する多層フィルムを作製できるようになる。

簡単に言えば、一態様において、本発明は、例えば2,6-ポリエチレンナフタレート(「PEN」)などの結晶質もしくは半結晶質のナフタレンジカルボン酸ポリエステル、またはエチレングリコール、ナフタレンジカルボン酸、およびテレフタレートなどのいくつかの他の酸から誘導される共重合体(「co-PEN」)から成り、正応力光

学係数、すなわち、延伸させると屈折率が延伸方向に増加するような光学係数を有し、平均厚が0.5ミクロン以下である層と、例えばポリエチレンテレフタレート(「PEN」)などの所定の第二のポリマーから成り、平均厚が0.5ミクロン以下である層とを含む多層ポリマーフィルムを提供する。本発明のフィルムを少なくとも一方向に延伸させた後、該ナフタレンジカルボン酸ポリエステルの層が、第二のポリマーの層よりも、少なくとも一つの面内の軸に関して大きい屈折率を有

することが好ましい。本発明のフィルムを使用して、少なくとも幅100nmの帯域 にわたって少なくとも50%の平均反射率を有する多層フィルムを作製することが できる。

もう一つの態様において、本発明は、例えばPETなどの結晶質または半結晶質のポリエステルから成り、平均厚が0.5ミクロン以下である層と、例えばポリエステルまたはポリスチレンなどの所定の第二のポリマーから成り、平均厚が0.5ミクロン以下である層とを含むとともに、少なくとも一つの方向に延伸され、しかも延伸前のその方向の寸法の少なくとも二倍の長さに引き伸ばされた多層ポリマーフィルムを提供する。本発明のフィルムを使用して、少なくとも幅100nmの帯域にわたって少なくとも50%の平均反射率を有する多層フィルムを作製することができる。

#### 図面の簡単な説明

図面を参照して、本発明を更に説明する。

図laおよびlbは、本発明の偏光子の概略図である。

図2は、本発明のPENおよびcoPENの特徴的な屈折率を示すグラフである。

図3は、図2に示した屈折率に基づいて50層PEN/coPENフィルム積層の透過率を コンピュータシミュレーションにより求めたデータの

グラフである。

図4は、均等に二軸延伸した300層PEN/coPEN鏡の透過率をコンピュータシミュレーションにより求めたデータのグラフである。

図5は、1,300nm付近に一次ピークを有する本発明の51層 I.R. 偏光子の透過率の 実測値のグラフである。

図6は、互いにラミネートされた本発明の8個の51層偏光子の透過率の実測値のグラフである。

図7は、本発明の204層偏光子の透過率の実測値のグラフである。

図8は、互いにラミネートされた本発明の2個の204層偏光子の透過率の実測値 のグラフである。

図9は、本発明のオーバーヘッドプロジェクターの略図である。

図10は、単一界面を形成する二重積層フィルムを示している。

図11および12はそれぞれ、屈折率1.60の媒質中の一軸複屈折系に対する反射率 対角度の曲線を示している。

図13は、屈折率1.0の媒質中の一軸複屈折系に対する反射率対角度の曲線を示している。

図14、15、および16は、一軸複屈折系に対する面内屈折率とz軸屈折率との間 の種々の関係を示している。

図17は、二つの異なる二軸複屈折系に対する軸外反射率対波長を示している。 図18は、z軸屈折率差の大きい二軸複屈折フィルムにおけるy軸屈折率差の導入 効果を示している。

図19は、z軸屈折率差のより小さい二軸複屈折フィルムにおけるy軸屈折率差の 導入効果を示している。

図20は、図18および19から得られる情報をまとめた等高線プロットを示している。

図21~26は、実施例3~6で与えられた多層鏡の光学性能を示して

いる。

図27~31は、実施例7~11で与えられた多層偏光子の光学性能を示している。

図32は、実施例12で与えられた多層鏡の光学特性を示している。

図33は、実施例13のARコート多層反射偏光子の光学性能を示している。

図34は、実施例14の多層反射偏光子の光学性能を示している。

図35a~cは、実施例15で与えられた多層偏光子の光学性能を示している。

### 実施態様の詳細な説明

図1aおよび1bに示したように、本発明には、2,6-ポリエチレンナフタレート(PEN) 12などの結晶質ナフタレンジカルボン酸ポリエステルと、所定のポリマー14とから成る交互層を有する多層ポリマーシート10が含まれるが、これは反射偏光子または鏡として有用である。一軸配向から二軸配向の範囲にわたってPEN/所定ポリマーを延伸することにより、いろいろな面方向に偏光された入射光に対してある範囲の屈折率を有するフィルムが作製される。二軸延伸を行う場合は、シ

ートを直交する軸に沿って非対称的に延伸するか、または直交する軸に沿って対 称的に延伸することによって、所望の偏光特性および反射特性が得られる。

偏光子に対しては、単一方向の延伸によりシートを配向させるのが好ましく、PEN層の屈折率が、配向方向および横方向に平行な偏光面を有する入射光線ごとに大きく異なるようにする。面内軸(フィルム表面に並行な軸)に関する屈折率とは、この軸に並行な偏光面を有する面偏光入射光に対する有効屈折率である。配向方向とは、フィルムが延伸される方向を意味する。横方向とは、フィルム面内

にあって、フィルムの配向方向に対して垂直な方向を意味する。

PENが好ましい材料である理由は、延伸後に大きな正応力光学係数および永久 複屈折を有するからであり、波長550nmの偏光入射光に対する屈折率は、その偏 光面が延伸方向に並行な場合、約1.64から約1.9程度まで増大する。PENおよびナフタレート70/テレフタレート30のコポリエステル(coPEN)が延伸率5:1の時に呈する異なる面内軸に関する屈折率の差を図2に示す。図2において、下側の曲線上のデータは、PENの横方向の屈折率およびcoPENの屈折率を表し、一方、上側の曲線は、PENの延伸方向の屈折率を表す。PENは、可視スペクトル領域で0.25から0.40までの屈折率の差を呈する。分子配向を増大させることによって複屈折(屈 折率の差)を増加させることができる。用途ごとの収縮要件にもよるが、PENは 約155℃から約230℃まで熱に対して安定である。複屈折層用の好ましいポリマーとしてPENについてこれまで具体的に説明してきたが、ポリブチレンナフタレートならびに他の結晶質ナフタレンジカルボン酸ポリエステルもまた、好適な材料である。結晶質ナフタレンジカルボン酸ポリエステルは、異なる面内軸に関する 屈折率の差が少なくとも0.05、好ましくは0.20を超える。

(単一または複数の)延伸方向の高い屈折率が実質的に損なわれないかぎり、 少量のコモノマーをナフタレンジカルボン酸ポリエステルに置換してもよい。屈 折率の低下(従って、反射率の減少)を、次の利点、すなわち、所定のポリマー 層への接着、押出温度の低下、溶融体粘度のマッチングの良化、延伸のためのガ ラス転移温度のマッチングの良化、のいずれかによって相殺してもよい。好適な モノマーとしては、イソフタル酸、アゼライン酸、アジピン酸、セバシン酸、二 安息香酸、テレフタル酸、2.7-ナフタレンジカルボン酸、2.6-ナフタレンジカル ボン酸、またはシクロヘキサンジカルボン酸

に基づくものが挙げられる。

本発明のPEN樹脂/所定ポリマー樹脂に類似の溶融体粘度を持たせ、均一な多層 押出が行えるようにすることが好ましい。この二つのポリマーは、典型的な剪断 速度において5倍以内の溶融体粘度を有することが好ましい。

本発明のPEN層および好ましい所定ポリマー層は、互いに良好な接着性を呈するとともに、依然として多層シート中で別々の層として存在する。

本発明のポリマーのガラス転移温度はほぼ等しいため、延伸中に一組のポリマー層にひび割れが生じるなどの悪影響は現れない。ほぼ等しいとは、所定ポリマーのガラス転移温度がPEN層のガラス転移温度よりも低いことを意味する。所定ポリマー層のガラス転移温度をPEN層のガラス転移温度よりもわずかに高くしてもよいが、その差が40℃を超えてはならない。

層は1/4波長の厚さを有するとともに、異なる組の層は異なる波長域の光を反射するようにデザインされることが好ましい。各層が正確に1/4波長の厚さである必要はない。その最優先要件は、隣接する低一高屈折率フィルム対が0.5波長の全光学的厚さを有することである。図2に示される屈折率差を有する50層から成るPEN層/coPEN層の積層の帯域幅は、層の厚さを550nmの1/4波長となるよに選んだ場合、約50nmである。この50層から成る積層は、この波長域においておよそ99パーセントの平均反射率を示し、吸収は観測されない。透過率1パーセント(反射率99パーセント)未満を示すコンピュータモデルから得られた曲線を図3に示す。図3~8には、透過率パーセントで特徴付けられたデータが含まれる。本発明のフィルムによる吸収は観測されないので、反射率パーセントは次の関係で近似されると理解すべきである。

100- (透過率パーセント) = (反射率パーセント)

好ましい所定のポリマー層14は、屈折率の等方性を保持しており、図1aに示さ

れた横方向の軸に関するPENの屈折率と実質的に一致する。この方向に偏光面を 有する光は、この偏光子をほとんど透過するが、配向方向に偏光面を有する光は 、図1bに示されるように反射される。

本発明の反射偏光子は、眼鏡用レンズ、鏡、および窓などの光学要素に有用である。この偏光子は、サングラスとして体裁がよいとみなされる鏡様外観を有することが特徴である。更に、PENは非常に良好な紫外用フィルタであり、可視スペクトル域の端部まで効率的に紫外線を吸収する。本発明の反射偏光子はまた、薄い赤外シート偏光子としても有用である。

偏光子用としては、PEN層/所定ポリマー層の少なくとも一つの軸に関する屈折率が実質的に同等であることが好ましい。この軸、典型的には横方向の軸、に関する屈折率が一致すると、その方向の偏光面を有する光は実質的に全く反射されなくなる。所定ポリマー層の延伸方向に関する屈折率を低下させてもよい。所定ポリマーが負の複屈折を有する場合、隣接した層の配向軸に関する屈折率の差が増大するという利点が得られるが、横方向に平行な偏光面を有する光の反射は依然として無視できる。延伸後の隣接した層の横方向の軸に関する屈折率の差は、0.05未満、好ましくは0.02未満にする必要がある。その他に、所定ポリマーが正の複屈折を呈するように延伸することも可能であるが、熱処理によってこの複屈折を緩和し、PEN層の横方向の軸に関する屈折率と一致させることができる。この熱処理の温度は、PEN層の複屈折を緩和するほど高くしてはならない。

本発明の偏光子用の好ましい所定のポリマーとしては、20モル%から80モル%までのナフタレンジカルボン酸またはジメチルナフタレートなどのそのエステル、および20モル%から80モル%までのイソフタル酸もしくはテレフタル酸またはジメチルテレフタレートなどのそれらのエステルを、エチレングリコールと反応させた反応生成物であるコポリエステルが挙げられる。本発明の範囲内にある他のコポリエステルは、上述した性質を有するとともに、横方向の軸に関する屈折率がおよそ1.59~1.69である。もちろん、このコポリエステルはPENと一緒に同時押出できなくてはならない。他の好ましいコポリエステルは、イソフタル酸、アゼライン酸、アジピン酸、セバシン酸、二安息香酸、テレフタル酸

、2.7-ナフタレンジカルボン酸、2.6-ナフタレンジカルボン酸、またはシクロへキサンジカルボン酸に基づくものである。コポリエステルの他の好適な例としては、エチレングリコール、プロパンジオール、ブタンジオール、ネオペチルグリコール、ポリエチレングリコール、テトラメチレングリコール、ジエチレングリコール、シクロへキサンジメタノール、4-ヒドロキシジフェノール、プロパンジオール、ビスフェノールA、および1.8-ジヒドロキシビフェニル、または1.3-ビス(2-ヒドロキシエトキシ)ベンゼンをジオール反応物として使用するものが挙げられる。モノマーの屈折率の体積平均は、有用なコポリエステルを調製するうえで良い指針となる。更に、PENのガラス転移温度に匹敵するガラス転移温度を有し、かつ横方向の軸に関する屈折率がおよそ1.59~1.69であるコポリカーボネートもまた、本発明の所定のポリマーとして有用である。押出装置中における2種以上のポリマーのエステル交換反応によってコポリエステルまたはコポリカーボネートを形成することも、実用的な所定のポリマーを得るためのもう一つの可能な経路である。

鏡を作製するためには、2種の一軸延伸偏光シート10をそれぞれ

の配向軸を90°回転させて配置するか、またはシート10を二軸延伸する。二軸延伸する場合には、シート面内の両方向のPENの屈折率が増加するが、できるかぎり低い屈折率を有する所定のポリマーを選んで、両方の偏光面の光を反射させることが必要である。多層シートを二軸延伸すると、両方の軸に並行な面に対する隣接層の屈折率に差が生じて、両方の偏光面方向に光を反射する。PENを二軸延伸すると、これらの伸び軸に関する屈折率が1.64から1.75へわずかに増加するが、これに対して一軸延伸では1.9まで増加する。従って、反射率99%(従って、虹色の光彩は観測されない)の誘電体鏡を作製するためには、所定のポリマーとしては屈折率の低いcoPENが好ましい。光学モデルによると、屈折率を約1.55にすれば、こうしたことが可能であることが示唆される。層の厚さの標準偏差が5%で、6個の重ねた1/4波長の積層を用いて可視スペクトルの半分が対象となるようにデザインされた330層フィルムは、図4に示されるような予測性能を示す。延伸の対称性を増大させると、比較的対称性の高い反射特性および比較的低い偏光特性

を有する製品ができる。

必要な場合には、本発明のシートを二枚以上使用して、反射率、光学帯域幅、またはその両方を増大させてもよい。シート中の層対の光学的厚さが実質的に等しい場合、この複合体は、個々のシートと実質的に同じ帯域幅および反射スペクトルレンジ(すなわち、「バンド」)の光をいくらか効率よく反射する。シート中の層対の光学的厚さが実質的に等しくない場合、この複合体は、個々のシートよりも広い帯域幅にわたり光を反射する。偏光シートを有する複合結合型鏡シートは、全反射率を増大させるとともに、依然として透過光を偏光させる場合に有効である。その他に、単一シートを非対照的に二軸延伸し、所定の反射特性および偏光特性を有するフィルムを作製してもよい。

二軸延伸鏡に使用するのに好ましい所定のポリマーは、テレフタル酸、イソフタル酸、セバシン酸、アゼライン酸、、またはシクロヘキサンジカルボン酸を基材とし、できるかぎり低い屈折率を持たせ、しかもPEN層との接着を保持するようにする。なお、ナフタレンジカルボン酸を少量利用して、PENとの接着を改良してもよい。ジオール成分としては、既に述べたものが任意に利用できる。所定のポリマーは、屈折率が1.65未満、好ましくは屈折率が1.55未満であることが望ましい。

所定のポリマーをコポリエステルまたはコポリカーボネートにする必要はない。ビニルナフタレン、スチレン、エチレン、無水マレイン酸、アクリレート、メタクリレートなどのモノマーから作られたビニルポリマーおよびコポリマーを利用してもよい。ポリエステルやポリカーボネート以外の縮合ポリマーもまた有用であり、例えば、ポリスルホン、ポリアミド、ポリウレタン、ポリアミド酸、ポリイミドなどが挙げられる。ナフタレン基、ならびに塩素、臭素、および沃素などのハロゲンは、所定のポリマーの屈折率を所望のレベル(1.59~1.69)にまで高めて、偏光子の横方向に関するPENの屈折率と実質的に一致させるうえで有用である。アクリレート基およびフッ素は、鏡用として屈折率を低下させるうえで特に有用である。

図9は、本発明をオーバーヘッドプロジェクター30のホットミラーとして使用

する例を示している。プロジェクター30は、透過型プロジェクターで、従来のオーバーヘッドプロジェクターの多くの特徴を有しており、土台32および映写ヘッド34を備えている。映写ヘッド34は、アーム(図示せず)により土台32に取り付けられており、従来の調節手段を用いてこのアームを上げたり下げたりすることによって土台32へ向かう方向または離れる方向へ移動させることがで

きる。土台32には、光源36、光源36用の電源(図示せず)、および映写台領域40 方向に光を導くための鏡38のような適切な光学要素が含まれる。従来型オーバー ヘッドプロジェクターの映写台領域40には、典型的には、映写ヘッド34へ光を導 くために一体的に形成された少なくとも一つのフレネルレンズを含むガラスなど の透過シートが含まれる。可視像を有する透明画を台40の上に置いた場合、ヘッ ド34内の鏡42およびレンズ44などの従来型光学部品によってその像を集め、例え ば近くのスクリーンまたは面に映写する。

オーバーヘッドプロジェクター30において、本発明の鏡46を使用し、可視光を透過させながら、光源36から放出される熱生成赤外エネルギーを反射させるのが有利である。赤外エネルギーの反射に使用する場合は、鏡46をホットミラーとして使用する。このことは、放出エネルギーの約85パーセントが赤外波長領域にある白熱光源の場合に特に重要である。赤外エネルギーを制御しないと、映写台40上に置かれた濃度の濃い透明画またはLCD映写パネルが過熱することがある。ホットミラーとして使用する場合は、通常、鏡46を光源36と映写台40との間に配置する。鏡46は分離した要素であってもよいし、または光源と映写台との間の光路の光学要素に鏡をコーティングしてもよい。

その他に、オーバーヘッドプロジェクター30において、赤外エネルギーを透過させながら可視光を反射させる鏡であるコールドミラーとして鏡46を使用することができる。また、本発明の鏡を光源36と映写台40との間に折り畳み式鏡(図示せず)として配置してもよい。多層コールドミラーの屈折率を、可視光に対して容易に95%までに高めることができる。本発明の鏡を、光源36の後方に配置された反射鏡38などの球面型凹面反射鏡へコールドミラーとしてコーティングすることにより、赤外エネルギーを透過させながら光源から

放出される可視光を集めて再び光の向きを調節するようにできる。

加熱空気中で個々のシートを延伸することにより、押出フィルムを配向させた。 経済的な生産のために、標準的な長さの延伸機、幅出機、またはそれらの両方を用いて連続的に延伸を行ってもよい。 標準的なポリマーフィルム生産のスケールメリットおよびラインスピードを達成することより、 市販の吸収偏光子に係るコストよりも実質的に易いコストを達成することができる。

二つ以上のシートをラミネートすることは、反射率の増大または帯域幅の拡大または二つの偏光子を用いた鏡の作製を行う上で有利である。非晶質コポリエステルは、ラミネート材料として有用であり、これまでに試験した材料としては、オハイオ州AkronにあるGoodyear Tire and Rubber Co.から入手できるVITEL Brand 3000および3300が特筆にあたいする。広範囲にわたってラミネート材料を選択できるが、シート10への接着、光学的清澄性、空気の排除が主要な指導原理である。

酸化防止剤、押出助剤、熱安定化剤、紫外線吸収剤、核形成剤、表面突起形成 剤など、一つ以上の無機または有機の助剤を通常量で一つ以上の層に添加するこ とが望ましいが、その添加によって本発明の性能が実質的に妨害されないように する必要がある。

## 多重積層の光学的挙動およびデザインに関する考察

次に、既に図1aおよび1b中で示したような多重積層10の光学的挙動を、より一般的に説明する。

多重積層の光学的挙動およびデザインに関する考察を以下に記述するが、こう したことを配慮することによりブルースター角が非常に大きいかまたは存在しな い多重積層を作製することが可能となる。これにより、p偏光に対する反射率が 入射角とともにゆっくりと減

少するか、入射角に依存しないか、または入射角が直角から離れるにつれて増大する多層の鏡および偏光子の作製が可能となる。その結果、広い帯域幅および広い角度範囲にわたり s 偏光および p 偏光の両方に対する高い反射率が達成できる

多重積層に対する垂直入射における平均透過率(偏光子の場合には消光軸を含 む面方向に偏光された光に対して、鏡の場合には両方の偏光に対して)は、目的 とする帯域幅にわたり50%(反射率0.5)未満にすることが望ましい。(本発明の 目的に対しては、透過率および反射率について与えられた値はすべて、前面反射 および裏面反射を含むものと理解すべきである)。この他に、より低い平均透過 率および/またはより大きい目標帯域幅および/または直角を基準により大きい 範囲にわたる角度を呈する積層もある。赤、緑、または青など、一つの色だけが 中心となるように目標帯域幅を設定する場合は、各帯域幅がそれぞれ100nmの有 効帯域幅を持つようにし、多重積層の平均透過率が50%未満となるようにするの が望ましい。100nmの帯域幅にたわり平均透過率が10%未満である多重積層もまた 好ましい。他の好ましい多重積層としては、例えば、200nmの帯域幅にわたり平 均透過率が30%未満のものが挙げられる。更に他の好ましい多重積層としては、 可視スペクトルの帯域幅(400~700nm)にわたり10%未満の平均透過率を呈する のものが挙げられる。最も好ましい多重積層は、380~740nmの帯域幅にたわり10 %未満の平均透過率を呈するものである。帯域幅を広げて、角度変化に伴うスペ クトルシフトおよび多重積層厚や全フィルム厚の変化に対処するのは、可視光に 利用する場合ですら有用である。

多重積層10は、数十、数百、または数千の層を含むことができ、各層は多数の 様々な材料の中から任意のものを選んで作製できる。特定の積層用の材料に何を 選ぶかを決める特徴的要因は、その積層

にどのような光学的性能を持たせるかにより変わる。

積層には、その積層中に含まれる層の数と同程度の数の材料を含めることができる。製造を容易にするために、光学薄膜積層がわずか数種の異なる材料を含むことが好ましい。具体的に説明するために、本明細書中では、二種の材料を含む多重積層について記載する。

材料の境界、または異なる物理的性質を有する化学的には同一の材料の境界は、急減に変化させてもまたは徐々に変化させてもよい。解析解を有する単純な場合を除き、屈折率が連続的に変化する後者のタイプの層状媒質の解析は、通常、

急激に変化する境界を有するが隣接層間での性質の変化はごくわずかである更に 多数の薄い均一層として扱う。

数個のパラメータが、任意の多重積層において到達できる最大反射率に影響を及ぼす可能性がある。これらのパラメータとしては、基本的積層デザイン、光吸収、層厚制御、および積層中の層の屈折率の関係が挙げられる。高反射率および/または鋭い帯域端を得るには、標準的薄膜光学デザインを利用して光学千渉効果を基本的積層デザインに取り入れる必要がある。このデザインでは、典型的には、光学的に薄い膜、すなわち、対象とする波長の0.1倍~1.0倍の範囲の光学的厚さを有する薄膜を使用する。高反射率多層フィルム用の基本構造プロックは低/高屈折率フィルム層対であり、この場合、それぞれの低/高屈折率フィルム層対は、合計の光学的厚さが、デザインの対象となる反射光の帯域の中心波長の1/2である。このようなフィルムの積層は、通常、1/4波長積層と呼ばれる。

光吸収を最小限に抑えるために、積層により最も強く吸収される波長がその積層により反射される最初の波長であることが保証された多重積層が好ましい。ほとんどのポリマーが含まれるが、最も清澄な光学材料では、可視スペクトルの青色端に近づくにつれて吸収

が増大する。従って、「青色」層が多重積層の入射側にくるように多重積層を調整することが好ましい。

交互低/高屈折率薄膜から成る多層構成物は、しばしば「パイルオブプレーツ」と呼ばれるが、波長や帯域幅の調整の束縛を受けず、積層中のいかなる特定の層においても選択的に反射される波長の光はない。こうした構成物では、青色光が積層中へ入り込むために青色光の反射率が悪影響を受け、その結果、好ましい1/4波長積層デザインに対するものよりも高い吸収率を持つことになる。「パイルオブプレーツ」中の層数を無作為に増加させても、必ずしも高い反射率、しかも吸収率ゼロが得られるわけではない。また、任意の積層中の層数を無作為に増加させても、吸収率の増加を生じて所望の反射率が得られないこともある。

各フィルム層中の相互の屈折率の関係、およびフィルム積層中の他の層の屈折 率との関係が、任意の方位方向からの任意の入射角における多重積層の反射挙動 を決定する。同一材料の層はすべて同一の屈折率を有すると仮定すると、二成分 1/4波長積層の単一界面の解析が可能となり、角度の関数として全積層の挙動が 理解できる。

従って、説明を簡単にするために、単一界面の光学的挙動について記述する。 しかしながら、本明細書中に記載した原理に従った実際の多重積層を、数十、数 百、または数千の層から形成することが可能であると理解すべきである。図10に 示したような単一界面の光学的挙動を説明するために、z軸および一つの面内光 学軸を含む入射面に対するs偏光およびp偏光の入射角の関数として反射率をプロットした。

図10は、単一界面を形成する二種材料フィルム層を示しており、いずれも屈折率が等方的な媒質中に包埋されている。説明を簡単にするために、本明細書中での説明では、二つの材料の光学軸を調整

し、一方の光学軸(z)はフィルム面に垂直で、他方の光学軸はx軸およびy軸に 沿って存在する直交多層複屈折系を対象とする。しかしながら、光学軸が直交す る必要はなく、非直交系も本発明の精神および範囲内に十分含まれることを理解 すべきである。また、光学軸をフィルム軸に一致させて本発明の所定の範囲内に 入るようにする必要はないことを更に理解すべきである。

誘電体界面の反射率は、入射角の関数として変化し、等方性材料に対してはp 偏光およびs偏光により異なる。p偏光に対する反射率の最小値は、いわゆるブル ースター効果に依存し、この反射率がゼロになる角度はブルースター角と呼ばれ る。

任意の入射角における任意のフィルム積層の反射挙動は、関係するすべてのフィルムの誘電テンソルにより決まる。このトピックに関する一般的な理論的取り扱いは、1987年にNorth-Hollandから出版されたR.M.A. AzzamおよびN.M. Bashar a著「Ellpsometry and Polarized Light」の本文中に記載されている。

系の単一界面に対する反射率は、それぞれ式1および式2で与えられるp偏光およびs偏光に対する反射係数の絶対値を二乗することによって計算される。式1および式2は、二つの成分の軸が一致した一軸直交系に対して有効である。

1)  $r_{pp} = \frac{n2z * n2o \sqrt{(n1z2 - no2sin2\theta)} - n1z * n1o \sqrt{(n2z2 - no2sin2\theta)}}{n2z * n2o \sqrt{(n1z2 - no2sin2\theta)} + n1z * n1o \sqrt{(n2z2 - no2sin2\theta)}}$ 

2) 
$$r_{xx} = \frac{\sqrt{(n102 - n02\sin 2\theta)} - \sqrt{(n202 - n02\sin 2\theta)}}{\sqrt{(n102 - n02\sin 2\theta)} + \sqrt{(n202 - n02\sin 2\theta)}}$$

ただし、θは等方性媒質中で測定される。

一軸複屈折系においては、nlx=nly=nloかつn2x=n2y=n2oである。

二軸複屈折系に対しては、式1および式2は、図10で規定されたx-z面またはy-z面に平行な偏光面を有する光に対してだけ有効である。従って、二軸系においては、x-z面の光入射に対して、式1ではnlo=nlxかつn2o=n2x(p偏光に対して)、式2ではnlo=nlyかつn2o=n2y(s偏光に対して)となる。y-z面の光入射に対して、式1ではnlo=nlyかつn2o=n2y(p偏光に対して)、式2ではnlo=nlxかつn2o=n2x(s偏光に対して)となる。

式1および式2は、反射率が積層中の各材料のx,y(面内)方向およびz方向の屈 折率に依存することを示している。等方性材料では、三つの屈折率はすべて等し くなり、従ってnx=ny=nzである。nx、ny、およびnzの関係により、材料の光学 的特徴が決まる。三つの屈折率が異なる関係にあるときは、三つの一般的な部類 に属する材料、すなわち、等方性、一軸複屈折、および二軸複屈折を有する材料 に分けられる。式1および式2は、x軸またはy軸に沿った場合だけ、従ってx軸お よびv軸に関して別々に扱う場合だけを対象として二軸複屈折を記述している。

一軸複屈折材料は、一つの方向の屈折率が他の二つの方向の屈折率と異なる材料として定義される。本明細魯中での説明のために、一軸複屈折系を記述するための約束事として、nx=ny≠nzという条件を課す。x軸およびy軸は面内軸として定義され、それぞれの屈折率nxおよびnyは面内屈折率と呼ばれる。

一軸複屈折系を作製する一つの方法は、多重積層を二軸延伸することであり、この場合、この積層中の材料のうちの少なくとも一つは、その屈折率が延伸処理により影響を受ける(例えば、その屈折率が増加または減少する)。多重積層を二軸延伸すると、両方の軸に平行な面に対する隣接層の屈折率に差異を生じて両方の偏光面の光を反射することになる。

一軸複屈折材料は、正または負の一軸複屈折を有することができる。z屈折率が面内屈折率よりも大きい場合(nz>nxおよびny)は、正の一軸複屈折を生じる。z屈折率が面内屈折率よりも小さい場合(nz<nxおよびny)は、負の一軸複屈折を生じる。

二軸複屈折材料は、三つの軸すべてに関して屈折率が異なる材料、例えば、nx ≠ny≠nzである材料として定義される。ここでも、屈折率nxおよびnyは面内屈折 率と呼ばれる。二軸複屈折系は、多重積層を一方向に延伸することによって作製 することができる。言い換えると、積層を一軸延伸する。本明細魯中での説明の ために、x方向を二軸複屈折積層の延伸方向にとる。

#### 一軸複屈折系(鏡)

次に、一軸複屈折系の光学特性およびデザインに関する考察を述べる。既に説明したように、一軸複屈折材料に対する一般的な条件は、nx=ny≠nzである。従って、図10の各層102および104は一軸複屈折を呈し、n1x=n1yおよびn2x=n2yである。本明細書中での説明のために、層102は層104よりも大きな面内屈折率を有し、かつx方向およびy方向の両方に対してn1〉n2であると仮定する。一軸複屈折多層系の光学的挙動は、n1zおよびn1zの値を変化させて、異なるレベルの正または負の複屈折を導入することにより調整できる。いろいろな屈折率の間の関係を直接測定してもよいし、または本明細書中に記載されているように、得られたフィルムのスペクトルを解析することよって一般的な関係を間接的に観測してもよい。

鏡の場合、個々の偏光および入射面を有する光に対する所望の平均透過率は、 鏡の使用目的に依存する。可視スペクトル内の100nm帯域幅にわたる狭い帯域幅 の鏡に刻する直角入射における各延伸方向に沿った平均透過率は、30%未満、好 ましくは20%未満、より好ま

しくは10%未満にするのが望ましい。部分鏡に対する直角入射における各延伸方向に沿った望ましい平均透過率は、例えば10%~50%など、任意の値をとり、個々の用途にもよるが、例えば100nm~450nmなど、任意の帯域幅を対象にできる。高効率鏡に対しては、可視スペクトル領域(400nm~700nm)にわたる直角入射にお

ける各延伸方向に沿った平均透過率は、10%未満、好ましくは5%未満、より好ましくは2%未満、更に好ましくは1%未満にするのが望ましい。その他、ある種の用途に対しては非対称鏡が望ましいこともある。この場合は、一つの延伸方向に沿った平均透過率は、例えば50%未満とし、一方、その他の延伸方向に沿った平均透過率は、例えば可視スペクトル領域(400nm~700nm)の帯域幅にわたり、または町視スペクトル領域から近赤外領域(例えば、400nm~850nm)にわたり、例えば20%未満にするのが望ましいこともある。

上述の式1を使用して、図10に示すような二層から成る一軸複屈折系の単一界面の反射率を決定することができる。s偏光に対しては、式2は等方性フィルム(nx=ny=nz)の場合と同じになるので、式2だけを調べる必要がある。説明のために、フィルムの屈折率に対していくつかの具体的でしかも一般的でもある値を設定する。n1x=n1y=1.75、n1z=変数、n2x=n2y=1.50、n2z=変数のように設定するものとする。この系において種々のブルースター角が可能であることを示すために、周囲の等方性媒質に対してno=1.60とする。

図11は、等方性媒質から複屈折層へのp偏光入射に対する反射率対角度の曲線を示しでいる。この場合、n1zは数値的にn2zよりも大きいかまたは等しい (n1z ≥n2z)。図11に示されている曲線は、次のz屈折率値、すなわちa)n1z=1.75、n2z=1.50;b)n1z=1.75、n2z=1.57;c)n1z=1.70、n2z=1.60;d)n1z=1.65、n2z=1.60;e)n1z=1.61、n2z=1.60;f)n1z=1.60=n2zに対するものである。n1z

がn2zに近づくと、ブルースター角、すなわち反射率がゼロとなる角度は増加する。曲線a~eには強い角度依存性がある。しかしながら、n1z=n2z (曲線f) の場合は、反射率の角度依存性がない。言い換えれば、曲線fに対する反射率は、すべての入射角に対して一定である。この時、式1は角度に依存しない形式: (n2o-n1o)/(n2o+n1o)に変わる。n1z=n2zの場合は、ブルースター効果はなく、すべての入射角に対して一定の反射率となる。

図12は、nlzが数値的にn2zより小さいかまたは等しいときの反射率対入射角の曲線を示している。光は等方性媒質から複屈折層へ入射する。これらの場合には

反射率が入射角とともに単調増加する。これがs偏光に対して観測される挙動である。図12の曲線aは、s偏光に対する一つの例である。曲線b~eは、種々のnz値におけるp偏光に対する例を示しており、次の順序:b)n1z=1.50、n2z=1.60;c)n1z=1.55、n2z=1.60;d)n1z=1.59、n2z=1.60;e)n1z=1.60=n2zである。ここでも、n1z=n2z(曲線e)の場合は、ブルースター効果はなく、すべての入射角に対して一定の反射率となる。

図13は図11および図12と同じ例であるが、屈折率no=1.0の入射媒質(空気)に対するものである。図13の曲線は、屈折率n2x=n2y=1.50、n2z=1.60である正の一軸材料と、n1x=n1y=1.75、n1zの値が上から下へ次の順序:a)1.50;b)1.55;c)1.59;d)1.60;f)1.61;g)1.65;h)1.70;i)1.75で示された負の一軸復屈折材料との単一界面におけるp偏光に対してプロットしたものである。ここでで、、図11および図12で示されたように、n1zとn2zの値が一致する場合(曲線d)は、反射率に対する角度依存性がない。

図11、図12、および図13は、一方のフィルムのz軸屈折率が他方のフィルムのz 軸屈折率と等しくなるときに、一つのタイプの挙動からもう一つのタイプの挙動 への移行が起こることを示している。

このことは、負および正の一軸複屈折材料および等方性材料との数種の組合せに 対して成り立つ。ブルースター角がより大きな角度からより小さい角度へとシフトするような別の状況も起こる。

面内屈折率とz軸屈折率との種々の可能な関係を図14、図15、および図16に示す。垂直軸は屈折率の相対値を示し、水平軸は種々の条件を分離するために使用されている。各図は、左側の二つの等方性フィルムから始まる。このフィルムではz屈折率が面内屈折率に等しい。右に移動するにつれて、面内屈折率は一定に保たれるが、z軸屈折率が様々に増加または減少し、これにより正または負の複屈折の相対的な量を示している。

図11、図12、および図13に対する上述の例が、図14に示されている。材料1の面内屈折率が材料2の面内屈折率よりも大きく、材料1は負の複屈折(n1zが面内屈折率未満)を有し、材料2は正の複屈折(n2zが面内屈折率を超える)を有する

。ブルースター角が消失し、反射率がすべての入射角に対して一定となる点は、 二つのz軸屈折率が等しくなる所である。この点は、図11の曲線f、図12の曲線e 、または図13の曲線dに相当する。

図15では、材料1は材料2よりも大きい面内屈折率を有するが、材料1が正の複 屈折を有し、材料2が負の複屈折を有する。この場合は、ブルースター角が小さ い角度の値へシフトするにすぎない。

図14および図15はともに、二つのフィルムのうち一つが等方性であると限定された場合に有効である。材料1が等方性で材料2が正の複屈折を有する場合と、材料2が等方性で材料1が負の複屈折を有する二つの場合が存在する。ブルースター効果がない点は、複屈折材料のz軸屈折率が等方性フィルムの屈折率と等しい所である。

もう一つの場合は、両方のフィルムが同じタイプ、すなわち、両方とも負の複 屈折か、または両方とも正の複屈折を有する場合であ

る。図16は、両方のフィルムが負の複屈折を有する場合を示している。しかしながら、二つの正の複屈折層の場合は、図16に示された二つの負の複屈折の場合と類似していることを理解すべきである。前の場合と同じように、一つのz軸屈折率がその他のフィルムのz軸屈折率と等しいかまたは交差する場合だけ、ブルースター最小値が消失する。

二つの材料の面内屈折率は等しいが、z軸屈折率が異なるときには、更にもう一つの場合が生じる。この場合は、図14~16に示された三つの場合すべての部分集合であり、任意の角度においてs偏光に対する反射は起こらず、p偏光に対する反射率は入射角が増大するにつれて単調増加する。このタイプの製品は、入射角が増大するにつれてp偏光に対する反射率が増加し、s偏光に対しては透過性を示す。こうした製品は、「p偏光子」と呼ばれることがある。

一軸複屈折系の挙動を説明する上述の原理およびデザインを考慮すると、広範 な環境および用途に対して所望の光学効果を有する多重積層を得ることができる 。多重積層中の層の反射率を操作および調整して、所望の光学特性を有する装置 を製造することができる。様々な面内屈折率およびz軸屈折率を有する多くの負 および正の一軸複屈折系を作製することができ、本明細書中に記載された原理を 使用して、多くの有用な装置をデザインおよび製造することができる。

#### 二軸複屈折系 (偏光子)

次に、図10を再び参照して、二成分直交二軸複屈折系および得られる光学的性質に影響を及ぼすデザインについての考察を述べる。ここでも系が多くの層を有していてもよいが、一つの界面を調べることによって、この積層の光学的挙動を理解することができる。

広範な入射角にわたり一つの軸に平行な偏光面を有する光に対して高い屈折率を呈するように、またそれと同時に、広範な入射角にわたりその他の軸に平行な偏光面を有する光に対して低い反射率および高い透過率を持つように二軸複屈折系をデザインすることができる。その結果、二軸複屈折系は、一つの偏光を透過し、その他の偏光を反射する偏光子として働くようになる。各フィルムの三つの屈折率、すなわちnx、ny、およびnzを制御することによって、所望の偏光子挙動を得ることができる。ここでも、屈折率を直接測定してもよいし、または本明細書中に記載されているように、得られたフィルムのスペクトルを解析することよって間接的に観測してもよい。

再び図10を参照する。説明のために次の値のフィルム屈折率を設定する。すな わち、nlx=1.88、nly=1.64、nlz=変数、n2x=1.65、n2y=変数、n2z=変数と する。x軸を消光方向にとり、y軸を透過方向にとる。

式1を使用すると、延伸(xz面)方向または非延伸(yz面)方向のいずれかの 入射面を有する光に関する二つの重要な場合に対して二軸複屈折系の角度挙動を 予測することができる。この偏光子は、一つの偏光面に関しては鏡であり、その 他の方向に関しては窓である。延伸方向では、数百層から成る多重積層中におけ る1.88-1.65=0.23という大きな屈折率差のために、s偏光に対して非常に大き い反射率を生じる。p偏光に対しては、種々の角度における反射率がn1z/n2zの屈 折率差に依存する。

多くの用途において、すべての入射角に対し、一つの軸(いわゆる消光軸)に 沿って高い反射率を有するとともに、その他の軸(いわゆる透過軸)に沿ってゼ ロの反射率を有する反射偏光子が理想的である。偏光子の透過軸に対しては、一般的には、対象とする帯域

幅にわたり、更にまた対象とする角度範囲にわたり、透過軸方向の偏光の透過率が最大となるようにするのが望ましい。100nmの帯域幅を有する狭い帯域の偏光子に対する垂直入射における平均透過率は、少なくとも50%、好ましくは少なくとも70%、より好ましくは少なくとも90%にすることが望ましい。100nmの帯域幅を有する狭い帯域の偏光子に対する垂直方向から60度におけるp偏光(透過軸に沿って測定する)の平均透過率は、少なくとも50%、好ましくは少なくとも70%、より好ましくは少なくとも80%にすることが望ましい。

偏光子の垂直入射における平均透過率は、透過軸に関して可視スペクトル域(400nm~700nmで、帯域幅を380nmとする)にわたり、少なくとも50%。好ましくは少なくとも85%、更に好ましくは少なくとも90%にすることが望ましい。垂直方向から60度(透過軸に沿って測定する)における偏光子の平均透過率は、400nm~700nmにおいて少なくとも50%、好ましくは少なくとも70%、より好ましくは少なくとも80%、更に好ましくは少なくとも90%にすることが望ましい。

ある種の用途においては、垂直以外の角度において透過軸での反射率が高いことが好ましい。透過軸に沿って偏光を受けた光に対する平均反射率は、直角を基準に少なくとも20度の角度において20%を超えるようにする必要がある。

透過軸に沿っていくらかの反射率を有する場合は、偏光子の効率が減少する可能性がある。透過軸に沿って種々の液長に対する反射率が異なる場合は、透過光に色が加わる可能性がある。この色を測定する一つの方法は、対象となる液長域にわたって所定の一つの角度または複数の角度における透過率の二乗平均(RMS)を決定することである。着色RMS%、すなわちCRUS は次式により決定することができる。

$$C_{\text{RMS}} = \frac{\int_{0}^{\infty} ((T - \overline{I})^2)^{\nu_2} d\lambda}{\overline{I}}$$

ただし、 $\lambda$ 1から $\lambda$ 2までの範囲は対象となる波長域すなわち帯域幅であり、Tは透過軸に沿った透過率であり、Tは対象となる波長域における透過軸に沿った平均透過率である。

低着色偏光子が望ましい用途においては、直角を基準に少なくとも30度の角度、好ましくは直角を基準に少なくとも45度の角度、更に好ましくは直角を基準に少なくとも60度の角度において、着色RMS%を10%未満、好ましくは8%未満、より好ましくは3.5%未満、更に好ましくは2.1%未満にする必要がある。

対象となる帯域幅にわたり消光軸に沿って所望の量の反射率を有する特定用途に対しては、透過軸に沿った所望の着色RMS%を組み合わせた反射偏光子を使用するのが好ましい。例えば、およそ100nmの帯域を有する狭帯域偏光子に対しては、垂直入射における消光軸に沿った平均透過率が望ましくは50%未満、好ましくは30%未満、より好ましくは10%未満、更に好ましくは3%未満である。可視領域に帯域幅を有する偏光子(400nm~700nm、または300nmの帯域幅)に対しては、垂直入射における消光軸に沿った平均透過率が望ましくは40%未満、より望ましくは25%未満、好ましくは15%未満、より好ましくは5%未満、更に好ましくは3%未満である。

偏光面が透過軸に平行な光に対する直角以外の角度における反射率は、たとえ面内y屈折率が一致しているとしても、大きなz屈折率のずれがあると発生する可能性がある。従って、得られる系は、p偏光に対して大きな反射率を有し、s偏光に対して透過性が高くな

る。この場合を、既に鏡の場合の解析において「p偏光子」と呼んだ。

ー軸延伸偏光子に関しては、性能が、三つ (x、y、およびz) のいずれの方向 に対する交互層屈折率の間の関係にも依存する。本明細書中に記載されているように、高効率偏光子に対してはy屈折率の差およびz屈折率の差をできるだけ小さ くすることが望ましい。y屈折率のずれの発生は、z屈折率のずれを補償するもの

として説明される。屈折率のずれを故意に起こすか、または自然に発生するかにかかわらず、こうしたずれがあるといくらかの反射率を生じる。従って、重要な要因は、x屈折率の差をy屈折率の差およびz屈折率の差よりも大きくすることにある。反射率は、延伸方向および非延伸方向の両方の屈折率の差の関数として急速に増加するので、 $\Delta$   $ny/\Delta$  nx および  $\Delta$   $nz/\Delta$  nx の比をできるだけ小さくすることによって、対象となる帯域幅にわたり、かつ広範な角度範囲にわたり一つの軸に沿った強い消光を呈し、しかも、その直交軸に沿って強い透過を保持する偏光子を得る必要がある。0.05未満、0.1未満、または0.25未満の比は、許容できる。理想的には、 $\Delta$   $nz/\Delta$  nx比は0 であるが、0.25 未満または0.5 未満の比においても使用可能な偏光子が得られる。

図17は、PEN/coPENから成る800層の積層を用いたときの、非延伸方向の入射面を有するp偏光に対する75°における反射率(-Log[1-R]としてプロットされている)を示している。反射率は、可視スペクトル域(400nm~700nm)にわたる波長の関数としてプロットされている。550nmにおける曲線aに対する有効屈折率は、nly=1.64、nlz=1.52、n2y=1.64、およびn2z=1.63である。このモデル積層デザインは、1/4波長対に対して線形厚グレードであり、各対の厚さはdn=do+do(0.003)nで与えられる。すべての層の厚さは、ガウス

分布を有するランダム誤差および5%の標準偏差を持つものとした。

曲線aは、透過軸(y軸)に沿った可視スペクトル域にわたる高い軸外反射率を示すとともに、波長が異なるとと反射率のレベルも異なることを示している。これは大きなz屈折率のずれに起因する。このスペクトルは、層の厚さの誤差およびフィルムの厚さなどの空間的な不均一性に影響されるので、この場合には、非常に不均一で「多彩な」外観を呈する。ある種の用途に対しては、強い着色が望ましいこともあるが、例えば、液晶ディスプレーまたは他のタイプのディスプレーなど、均一で着色の少ないことが要求される用途に対しては、軸外色の程度を制御してそれを最小限に抑えることが望ましい。

ブルースター条件外軸を形成する非延伸面内屈折率(nlyおよびn2y)に屈折率 のずれを起こさせることによって、軸外反射率および軸外色を最小限に抑え、し かもs-偏光反射率は最小に保ったままにすることができる。

図18は、y屈折率のずれを起こして、二軸複屈折系の透過軸に沿った軸外反射率を減少させる効果を調べたものである。nlz=1.52およびn2z=1.63 (Δnz=0.11) に関して、次の条件でp偏光に対してプロットされている。すなわち、a)nly=n2y=1.64、b)nly=1.64、n2y=1.62、c)nly=1.64、n2y=1.66である。曲線aは、面内屈折率が等しい場合の反射率を示している。曲線aは、0°において反射率の最小値を有するが、20°を超えると急に上昇する。曲線bは、nly>n2yであり、反射率は急激に上昇する。nly<n2yの場合に相当する曲線cは、38°において反射率の最小値を有するが、その後は急に上昇する。曲線dで示されるように、nly≠n2yのときはs偏光に対しても同様にかなりの反射が起こる。図18の曲線a~dは、ブルースター最小値が存在するようにするために、y屈折率のずれ(nly

n2y)の符号がz屈折率のずれ (n1z-n2z) の符号と同じでなければならないことを示唆する。n1y=n2yの場合には、s偏光に刻する反射率はすべての角度においてゼロである。

層間のz屈折率の差を減少させることによって、軸外反射率を更に小さくすることができる。nlzがn2zに等しい場合、消光軸は、依然として、垂直入射の場合と同じように高反射率の軸外角(off-angle)を有すること、更にまた両方の屈折率が一致するために(すなわち、nly=n2yおよびnlz=n2z)、いかなる角度においても非延伸軸に沿った反射は起こらないことが図13から示唆される。

二つのy屈折率および二つのz屈折率を正確に一致させることは、ある種の多層 系では不可能であろう。偏光装置においてz軸屈折率が一致しない場合、面内屈 折率nlyおよびn2yにわずかなずれを起こさせることが望ましい。こうしたずれは 、他の成分を材料層の一方または両方にブレンドして、以下の実施例15に記載さ れているように、それぞれのy屈折率を増加または減少させることによって引き 起こすことができる。複屈折率の高い層を形成するポリマーまたは所定のポリマ 一層を形成するポリマーのいずれかへ第二の樹脂をブレンドすることによって、 直角および直角以外の角度において透過軸に対する反射を改良するか、または消 光軸方向に偏光した光に対する偏光子の消光を改良することができる。ブレンド された第二の樹脂は、配向後のポリマーの結晶化度および屈折率を変えることに よって、こうした改良を行うことができる。

n1z=1.56およびn2z=1.60 (Δnz=0.04) と仮定し、次のy屈折率、すなわち 、a)n1y=1.64、n2y=1.65、b)n1y=1.64、n2y=1.63を用いたもう一つの例が図 19にプロットされている。曲線cは両方の場合におけるs偏光に対するものである 。曲線aでは、y屈折率のずれの符号がz屈折率のずれの符号と同じであり、最小の軸外角反

#### 射率が得られる。

図19の曲線aの条件を用いて、入射角75°における800層フィルム積層の軸外反射率を計算した結果が、図17の曲線bとしてプロットされている。 図17の曲線bを曲線aとを比較すると、はるかに少ない軸外反射率であるために、曲線bをプロットした条件では、より少ない着色およびより良好な均一性が得られることが分かる。550nmにおける曲線bの有効屈折率は、n1y=1.64、n1z=1.56、n2y=1.65、n2z=1.60である。

図20は、式1の等高線プロットを表しており、p偏光に対して図10に関連して説明した軸外反射率をまとめたものである。非延伸方向に含まれる四つの独立した屈折率を、二つの屈折率のずれ、すなわち $\Delta$ nzおよび $\Delta$ nyとしてまとめた。このプロットは、0°~75°の種々の入射角を15度刻みに6プロット選んで平均したものである。屈折率は、等高線aに対する $0.4\times10^{-4}$ から等高線jに対する $4.0\times10^{-4}$ までの範囲であり、 $0.4\times10^{-4}$ の一定量ずつを増加させてある。このプロットは、一つの光学軸に沿った屈折率のずれによって生じる高い屈折率が、その他の軸に沿ったずれにより如何に打ち消すことができるかを示すものである。

従って、二軸複屈折系の層間のz屈折率のずれを減少させることによって、および/またはy屈折率のずれを生じさせてブルースター効果を引き起こすことによって、多層反射偏光子の透過軸に沿った軸外反射率、従って軸外色が最小限に抑えられる。

更に、狭い波長領域にわたって作動する狭帯域偏光子もまた、本明細魯中に記

載の原理を使用してデザインすることができることも特筆にあたいする。これによって、例えば、赤、緑、青、シアン、マゼンタ、またはイエローの帯域の偏光 子を作製することができるようになる。

理想的な反射偏光子は、一つの偏光面を有するすべての光を透過するとともに、その他の偏光面を有するすべての光を反射するものでなければならない。清澄な光学用接着剤を用いて両側をガラスまたは他のフィルムにラミネートしないかぎり、空気/反射偏光子の界面における面反射によって所望の偏光面を有する光の透過率が減少するだろう。従って、反射偏光子に反射防止(AR)コーティングを施すことが有用な場合もある。ARコーティングは、PENを基材とした偏光子に対して、空気中における屈折率が1.64のフィルムの反射を抑えるようにデザインすることが好ましい。なぜなら、この値が非延伸(y)-方向のすべての層の屈折率に相当するからである。このコーティングは延伸方向に関して本質的に影響を与えることはない。なぜなら、延伸方向の交互屈折率積層は、面反射が存在するかしないかにかかわらず非常に高い反射係数を有するからである。当該技術分野で公知の任意のARコーティングを施すことが可能であるが、コーティングされた多層フィルムの過熱または損傷を引き起こしてはならない。具体的なコーティングとしては、理想的には1.64の平方根に近い屈折率を有する低屈折率材料から成る厚さ1/4波長のコーティングが挙げられる(PENを基材とする材料の場合)。

#### 材料の選択および処理

上述のデザインを考慮にいれて、所望の屈折率の関係が得られるように選ばれた条件下で処理すれば、多岐に渡る材料を使用し、本発明の従って多層の鏡または偏光子を作製できることが同業者には容易に分かるであろう。所望の屈折率の関係は、種々の方法で達成することができる。例えば、フィルムの配向中または配向後の延伸(例えば、有機ポリマーの場合など)、押出(例えば、液晶材料の場合など)、またはコーティングなどの方法がある。更に、二つの

材料が類似のレオロジー特性(例えば、溶融体粘度など)を有し、同時押出を実施できることが好ましい。

一般に、第一の材料として結晶質または半結晶質の材料、好ましくはポレマーを選ぶことによって適切な組合せが得られる。次に、第二の材料は、結晶質、半結晶質、または非晶質であってもよい。第二の材料が第一の材料と逆のまたは同じ複屈折を示すものであってもよい。その他、第二の材料が複屈折を示さないものであってもよい。

好適な材料を具体的に挙げると、例えば、ポリエチレンナフタレート(PEN) およびその異性体 (例えば、2,6-、1,4-、1,5-、2,7-、および2,3-PEN) 、ポリ アルキレンテレフタレート(例えば、ポリエチレンテレフタレート ポリブチレ ンテレフタレート、およびポリ-1,4-シクロヘキサンジメチレンテレフタレート )、ポリイミド(例えば、ポリアクリル酸イミド)、ポリエーテルイミド、アタ クチックポリスチレン、ポリカーボネート、ポリメタクリレート(例えば、ポリ イソプチルメタクリレート、ポリプロピルメタクリレート、ポリエチルメタクリ レート、およびポリメチルメタクリレート)、ポリアクリレート(例えば、ポリ ブチルアクリレートおよびポリメチルアクリレート)、シンジオタクチックポリ スチレン (sPS) 、シンジオタクチックポリ-α-メチルスチレン、シンジオタク チックポリジクロロスチレン、これらの任意のポリスチレンから成るコポリマー およびブレンド、セルロース誘導体(例えば、エチルセルロース、酢酸セルロー ス、プロピオン酸セルロース、酢酸酪酸セルロース、およびニトロセルロース) 、ポリアルキレンポリマー(例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブチ レン、ポリイソブチレン、およびポリ(4-メチル)ペンテン)、フッ素化ポリマ ー(例えば、ペルフルオロアルコキシ樹脂、ポリテトラフルオロエチレン、

フッ素化エチレンープロピレンコポリマー、ポリフッ化ビニリデン、およびポリクロロトリフルオロエチレン)、塩素化ポリマー(例えば、ポリ塩化ビニリデンおよびポリ塩化ビニル)、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリアクリロニトリル、ポリアミド、シリコーン樹脂、エポキシ樹脂、ポリ酢酸ビニル、ポリエーテルアミド、アイオノマー樹脂、エラストマー(例えば、ポリブタジエン、ポリイソプレン、およびネオプレン)、ならびにポリウレタンなどがある。その他に好適なものとしては、例えば、PENのコポリマー(例えば、2.6-、1.4-、1.5

-、2,7-、および/または2,3-ナフタレンジカルボン酸もしくはそれらのエステ ルと、(a)テレフタル酸もしくはそのエスデル、(b)イソフタル酸もしくはそのエ ステル、(c)フタル酸もしくはそのエステル、(d)アルカングリコール、(e)シク ロアルカングリコール (例えば、シクロヘキサンジメタノールジオール)、(f) アルカンジカルボン酸、および/または(g)シクロアルカンジカルボン酸(例え ば、シクロヘキサンジカルボン酸)とのコポリマー)、ポリアルキレンテレフタ レートのコポリマー (例えば、テレフタル酸もしくはそのエステルと、(a)ナフ タレンジカルボン酸もしくはそのエステル、(b)イソフタル酸もしくはそのエス テル、(c)フタル酸もしくはそのエステル、(d)アルカングリコール、(e)シクロ アルカングリコール (例えば、シクロヘキサンジメタノールジオール)、(f)ア ルカンジカルボン酸、および/または(g)シクロアルカンジカルボン酸(例えば ----、シクロヘキサンジカルボン酸) とのコポリマー)...、スチレンコポリマー (例え ば、スチレンーブタジエンコポリマーおよびスチレンーアクリロニトリルコポリ マー)、ならびに4.4'-二安息香酸とエチレングリコールとのコポリマーなど 、のコポリマーが挙げられる。更に、個々の層にはそれぞれ、二つ以上の上記の ポリマーまたはコポリマーのブレンド(例えば、spsとアタクチック

ポリスチレンとのブレンド)が含まれていてもよい。記載のcoPENはまた、ペレットのブレンドであってもよいが、少なくとも一つの成分がナフタレンジカルボン酸を基材とするポリマーであり、かつ他の成分がPET、PEN、またはcoPENなどの他のポリエステルまたはポリカーボネートでなければならない。

偏光子の場合の特に好ましい層の組合せとしては、PEN/co-PEN、ポリエチレンテレフタレート(PET)/co-PEN、PEN/sPS、PET/sPS、PEN/Eastar、およびPET/Eastarが挙げられる。ただし、「co-PEN」は、ナフタレンジカルボン酸を基材とするコポリマーまたはプレンドであり(上述した通り)、Eastarは、Eastman Chemical Co.から市販されているポリシクロヘキサンジメチレンテレフタレートである。

鏡の場合の特に好ましい層の組合せとしては、PET/Ecde 1、PEN/Ecde 1、PEN/sP S、PEN/THV、PEN/co-PET、およびPET/sPSが挙げられる。ただし、「co-PET」は 、テレフタル酸を基材とするコポリマーまたはプレンドであり(上述した通り) 、Ecde lは、Eastman Chemical Co.から市販されている熱可塑性ポリエステルで あり、THVは、3M Co.から市販されているフルオロポリマーである。

本発明のデバイス中の層の数は、フィルム厚、可撓性、および経済性の理由から最小の数の層を使用して所望の光学特性を達成するように選ぶ。偏光子および鏡のいずれの場合にも、層の数は、好ましくは10,000未満、より好ましくは5,000未満、(更に好ましくは)2,000未満である。

既に述べたように、種々の屈折率の間の所望の関係(従って、多層デバイスの 光学特性)を達成することができるかは、多層デバイスの作製に使用する処理条件によって影響を受ける。延伸により配向させることができる有機ポリマーの場合は、一般的には、それぞ

れのポリマーを同時押出して多層フィルムを形成し、次に、所定の温度で延伸を 行ってフィルムを配向させ、続いて、必要な場合には、所定の温度で熱硬化させ ることによって、こうしたデバイスを作製する。その他、延伸工程および配向工 程を同時に実施してもよい。偏光子の場合には、実質的に一方向にフィルムを延 伸し(一軸配向)、鏡の場合には、実質的に二つの方向に延伸する(二軸配向)

縦一横の自然縮小(延伸比の平方根に等しい)〜束縛(すなわち、縦一横の寸法が実質的に変化しない)の条件下で、フィルムの縦一横方向の寸法緩和を行ってもよい。長さ延伸機を用いて機械方向に、また幅出機を用いて幅方向にフィルムを延伸してもよい。

予備延伸温度、延伸温度、延伸速度、延伸比、熱硬化温度、熱硬化時間、熱硬化緩和、縦一横緩和を選択して、所望の屈折率の関係を有する多層デバイスを作製する。こうした変数には相互依存性があり、従って、具体的には、比較的遅い延伸速度と併用する場合は、例えば、比較的低い延伸温度が使用されることになるう。当業者にとっては、これらの変数の適切な組合せをいかに選んで所望の多層デバイスを完成させるかは自明であろう。しかしながら、一般的には、延伸比を、延伸方向に対して1:2から1:10(より好ましくは1:3から1:7)の範囲とし、

延伸方向に垂直な方向に対しては1:0.5から1:10 (より好ましくは1:0.5から1:7) の範囲とするのが好ましい。

好適な多層デバイスはまた、複屈折ポリイミドに対するスピンコーティング (例えば、Boese et al., J. Polym. Sci.: Part B, 30:1321(1992)に記載がある ) および結晶質有機化合物に対する真空蒸着 (例えば、Zang et. al., Appl. Ph ys. Letters, 59:823(1991)に記載がある) などの技術を使用して作製すること もできる。後者の技術は、結晶質有機化合物と無機材料とのある種の組合せに対して特に有用である。

次に、以下の実施例を用いて本発明を説明する。実施例の中では、光吸収が無視できるので、反射率は1から透過率を引いた値に等しい(R=1-T)。

実施例1(偏光子)

PENおよびナフタレート70/テレフタレート30コポリエステル(coPEN)を、標準的なポリエステル樹脂用反応釜中でエチレングリコールをジオールとして使用して合成した。PENおよびcoPENのいずれの固有粘度も、およそ0.6d1/gであった。PENおよびcoPENの単一層フィルムを押出し、次におよそ150℃においてサイドを拘束して一軸延伸した。押出されたままの状態では、PENは約1.65の等方的屈折率を呈し、co-PENは約1.64の等方的屈折率により特徴づけられた。等方的とは、フィルム面内のすべての軸に関する屈折率が実質的に等しいことを意味する。両方の屈折率の値は、550nmで観測した。延伸比5:1での延伸後、配向軸に関するPENの屈折率はおよそ1.88まで増加した。横方向の軸に関する屈折率はわずかに低下して1.64になった。延伸比5:1での延伸後、coPENフィルムの屈折率は、およそ1.64であり、等方性が保持された。

次に、51スロットフィードブロック(feed block)を用い、標準的な押出ダイに供給して同時押出を行うことにより、PENおよびcoPENの交互層から成る満足すべき多層偏光子を作製した。この押出は、およそ295℃で行った。PENはおよそ23 lb/hrで押出し、coPENはおよそ22.3 lb/hrで押出した。PENスキン層は、押出されたフィルム積層内の層のおよそ三倍の厚さであった。すべての内層を、約1300 mmの光に対して1/4波長の光学的厚さを持つようにデザインした。51層の積層の

押出およびキャストを行って、およそ0.0029インチの厚さにし、次に、およそ15 0℃においておよそ5:1の延伸比でサイド

を拘束して一軸延伸を行った。延伸されたフィルムは厚さがおよそ0.0005インチであった。

次に、延伸されたフィルムを、エアオーブン中、およそ230℃において30秒間 熱硬化させた。延伸されたフィルムおよび続いて熱硬化されたフィルムの光学スペクトルは、本質的には同じであった。

図5は、配向方向50および横方向52の両方に対する熱硬化前の51層の積層の透 過率パーセントの実測値のグラフである。

それぞれ上述したように作製された8個の51層偏光子を、流体を用いて結合し、エアギャップを除去して408個の光学層から成る偏光子を作製した。図6は、この408個の層を特徴づけるグラフであり、配向方向54および横方向56の両方に対する350nm~1,800nmにおける透過率パーセントを示している。

#### 実施例2(偏光子)

実施例1で述べたように、51スロットフィードブロック中でPENおよびcoPENの 押出を行い、次に、二層ダブリングマルチプライヤー(multiplier)を連続的に 使用して押出を行い、満足すべき204層偏光子を作製した。このマルチプライヤーは、フィードブロックから送出された押出済材料を1/2幅の二つの流れに分割し、次に、この1/2幅の流れを互いに重ね合わせる。米国特許第3,565,985号には、類似の同時押出マルチプライヤーが記載されている。固有粘度0.50 d1/gのPENを使用して、およそ295℃において22.5 lb/hrで押出を行い、一方、固有粘度0.6 0 d1/gのcoPENは16.5 lb/hrで処理した。キャストウェブは、厚さがおよそ0.003 8インチであり、このウェブに対して、延伸中の空気温度を140℃にし、サイドを拘束して長手方向に5:1の比で一軸延伸を行った。スキン層を除くすべての層対が、550nm光に対して1/2波長の光学的厚さとなるようにデザインし

た。図7の透過スペクトルにおいて、配向方向60の二つの反射ピークは、この透過スペクトルから中心が約550nmであることが分かる。この二重ピークは、層マ

ルチプライヤー中で生じたフィルム誤差の結果、またバックグラウンドの拡がりは、押出工程およびキャスト工程における累積フィルム誤差の結果である可能性が大きい。横方向の透過スペクトルは、58と記されている。この偏光子の消光は、光学用接着剤を用いてこれらのフィルムのうちの二つを一緒にラミネートすることによって、大きく改良できる。

次に、上述したように作製した2個の204層偏光子を、光学用接着剤を用いて手でラミネートし、408層のフィルム積層を作製した。好ましくは、接着剤の屈折率を等方的coPEN層の屈折率と一致させる必要がある。図7で顕著であった反射ピークは、ラミネートされたサンプルに対しては、図8に示すように平坦化する。こうしたことが起こる理由は、フィルムの領域ごとに異なる波長でランダムにピーク反射率を生じるからである。この効果は、しばしば「真珠光」と呼ばれる。ニコのフィルムをラミネートすると、色のランダムな変化がフィルムごとに異なるために、フィルムを重ねた場合、打ち消しあうようになり、その結果、真珠光が減少する。

真珠光は、本質的には、一つの領域における隣接する領域に対するフィルム層の不均一性の尺度である。厚さを完全に制御すれば、一つの波長を中心としたフィルム積層が、サンプルを横切って色の変化を起こすことはなくなる。可視スペクトル域全体を反射するようにデザインされた多重積層は、層厚誤差に起因して、ランダムな領域を介し、ランダムな波長で有意な光がリークする場合には、真珠光を呈することになる。本明細書中に提示したポリマー系のフィルム層間には大きな屈折率の差があるために、適度な数の層を用いて、フィルムの反射率を99パーセントより大きくすることができる。

このことは、押出工程中に適切な層厚制御が行えるなら、真珠光を除去するうえで大きな利点となる。層厚の値を10パーセント以下の標準偏差で制御できれば、PEN/coPEN偏光子に対して、わずか600層を用いただけで、可視スペクトルのほとんどにわたって99%を超える反射率が得られることが、コンピュータを用いた光学モデル計算により示された。

実施例3 (PET:Ecde 1、601、鏡)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、601層を含む 同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.6 d1/g (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンテレフタレート (PET)を毎時75ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、Ecde1 9966 (Eastman Chemicalから市販されている熱可塑性エラストマー)を毎時65ポンドの速度で送出した。PETをスキン層上に配置した。フィードブロック法 (例えば、米国特許第3.8 01.429号に記載されている方法)を使用して151層を形成させ、これを二台のマルチプライヤーに通して601層の押出物を作製した。米国特許第3.565.985号には、同時押出マルチプライヤーの例が記載されている。ウェブ温度を約210°Fにして長さ方向にウェブを延伸して延伸比を約3.6とした。続いて、約235°Fまで約50秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約6%の速度で横方向に延伸して延伸比を約4.0とした。次に、400°Fの熱硬化オーブン中でフィルムの最大幅の約5%の緩和を行った。仕上がりフィルム厚は2.5ミルであった。

作製されたキャストウェブは、空気側はきめが粗く、図21に示すような透過性を示した。角度60°におけるp偏光に対する透過%(曲線b)は、垂直入射における値(曲線a)と類似していた(波長シフ

トを伴う)。

比較を行ったところ、恐らく等方性材料から成るMearl Corporation製のフィルム (図22を参照されたい) は、角度60°においてp偏光に対して著しい反射率の低下を示した(曲線b、垂直入射に対する曲線aと比較される)。

実施例4 (PET:Ecdel、151、鏡)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、151層を含む 同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.6 d1/g(60重量%の フェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンテレフタレート(PET )を毎時75ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、Ecde 1 9966(Eastman Chem lcalから市販されている熱可塑性エラストマー)を毎時65ポンドの速度で送出し た。PETをスキン層上に配置した。フィードブロック法を使用して151層を形成さ せた。ウェブ温度を約210°Fにして長さ方向にウェブを延伸して延伸比を約3.5 とした。続いて、約215°Fまで約12秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約25%の速度で横方向に延伸して延伸比を約4.0とした。次に、400°Fの熱硬化オープン中でフィルムの最大幅の約5%の緩和を行った。仕上がりフィルム厚は約0.6ミルであった。

このフィルムの透過性を図23に示す。角度60°におけるp偏光に対する透過%( 曲線b)は、垂直入射における値(曲線a)と類似していたが、波長シフトを伴う ものであった。同じ押出条件でウェブ速度を低下させ、約0.8ミルの厚さを有す る赤外反射フィルムを作製した。その透過性を図24に示す(垂直入射に対しては 曲線a、60度に対しては曲線bが対応する)。

実施例5 (PEN: Ecde 1、225、鏡)

・キャストウェブを一回押出した後、実験用フィルム延伸機を用いてフィルムを配向させることによって、225層を含む同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.5 d1/g(60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート(PEN)を毎時18ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、Ecdel 9966(Eastman Chemicalから市販されている熱可塑性エラストマー)を毎時17ポンドの速度で送出した。PENをスキン層上に配置した。フィードブロック法を使用して57層を形成させ、これを二台のマルチプライヤーに通して225層の押出物を作製した。このキャストウェブは厚さ12ミル、幅12インチであった。この後、実験用延伸機を使用してウェブを二軸配向させた。この延伸機は、パントグラフを使用して矩形のフィルム片を把持し、一様な速度で両方向に同時に延伸する。7.46cmの矩形のウェブを約100℃で延伸機に充填し、60秒で130℃まで加熱した。次に、100%/sec(もとの寸法を基準に)で延伸を開始し、約3.5×3.5までサンプルを延伸した。延伸直後、このサンプルに室温の空気を吹き付けて冷却した。

図25は、この多層フィルムの光レスポンスを示している(垂直入射に対しては曲線a、60度に対しては曲線bが対応する)。角度60°におけるp偏光に対する透過%は、垂直入射における値と類似していることに注目されたい(いくらかの波長シフトを伴う)。

実施例6 (PEN:THV 500、449、鏡)

キャストウェブを一回押出した後、実験用フィルム延伸機を用いてフィルムを配向させることによって、449層を含む同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.53 d1/g(60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート(PEN)を毎時56ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、T

HV 500(Minnesota Mining and Manufacturing Companyから入手可能なフルオロポリマー)を毎時11ポンドの速度で送出した。PENをスキン層上に配置し、二つのスキン層中に50%のPENを含ませた。フィードブロック法を使用して57層を形成させ、これを三台のマルチプライヤーに通して449層の押出物を作製した。このキャストウェブは厚さ20ミル、幅12インチであった。この後、実験用延伸機を使用してウェブを二軸配向させた。この延伸機は、パントグラフを使用して矩形のフィルム片を把持し、一様な速度で両方向に同時に延伸する。7.46cmの矩形のウェブを約100℃で延伸機に充填し、60秒で140℃まで加熱した。次に、10%/sec(もとの寸法を基準に)で延伸を開始し、約3.5×3.5までサンプルを延伸した。延伸直後、このサンプルに室温の空気を吹き付けて冷却した。

図26は、この多層フィルムの透過性を示している。ここでもまた、曲線aは垂直入射におけるレスポンスを表し、曲線bは60度におけるレスポンスを表している。

実施例7 (PEN:CoPEN、449--低着色偏光子)

キャストウェブを一回押出した後、実験用フィルム延伸機を用いてフィルムを配向させることによって、449層を含む同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.56 d1/g(60重畳%のフェノール/40重畳%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート(PEN)を毎時43ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、固有粘度0.52(60重畳%のフェノール/40重畳%のジクロロベンゼン)のCoPEN(70モル%の2.6 NDCおよび30モル%のDMT)を毎時25ポンドの速度で送出した。PENをスキン層上に配置し、二つのスキン層中に40%のPENを含ませた。フィードブロック法を使用して57層を形成させ、これを三台のマルチプライヤー

## に通して449層の押出物を作

製した。このキャストウェブは厚さ10ミル、幅12インチであった。この後、実験用延伸機を使用してウェブを一軸配向させた。この延伸機は、パントグラフを使用して矩形のフィルム片を把持し、一様な速度で他方向を拘束したまま一方向に延伸する。7.46cmの矩形のウェブを約100℃で延伸機に充填し、60秒で140℃まで加熱した。次に、10%/sec(もとの寸法を基準に)で延伸を開始し、約5.5×1までサンプルを延伸した。延伸直後、このサンプルに室温の空気を吹き付けて冷却した。

図27は、この多層フィルムの透過性を示している。曲線aは垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射におけるp偏光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいても非延伸方向に偏光された光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいても非延伸方向に偏光された光の透過率が非常に高いことに注目されたい。400nm~700nmにわたる曲線aの平均透過率は87.1%であり、一方、400nm~700nmにわたる曲線bの平均透過率は97.1%である。60度におけるp偏光の透過率の方が高い理由は、空気/PEN界面が60°付近にブルースター角を有するために60°入射における透過率が100%近くになるためである。また、曲線cで示されるように可視領域(400nm~700nm)において延伸方向に偏光された光の消光率が高いことにも注目されたい。ここでの平均透過率は21.0%である。曲線aに対する着色RMS%は1.5%である。曲線bに対する着色RMS%は1.5%である。曲線bに対する着色RMS%は1.5%である。曲線bに対する着色RMS%は1.5%である。曲線bに対する着色RMS%は1.5%である。曲線bに対する着色RMS%

実施例8 (PEN:CoPEN、601--高着色偏光子)

ウェブを押出し、2日後に他の実施例のいずれで記載したものとも異なる幅出 機を用いてフィルムを配向させることによって、601層を含む同時押出フィルム を作製した。一方の押出機で、固有粘度

0.5 d1/g (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン) のポリエチレン ナフタレート (PEN) を毎時75ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、固有粘 度0.55 d1/g (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン) のIVを毎時6 5ポンドの速度で送出した。PENをスキン層上に配置した。フィードブロック法を使用して151層を形成させ、これを二台のマルチプライヤーに通して601層の押出物を作製した。米国特許第3,565,985号には、類似の同時押出マルチプライヤーが記載されている。延伸はすべて幅出機で行った。約280°Fまで約20秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約6%の速度で横方向に延伸して延伸比を約4.4とした。次に、460°Fに設定された熱硬化オーブン中でフィルムの最大幅の約2%の緩和を行った。仕上がりフィルム厚は約1.8ミルであった。

このフィルムの透過性が図28に示されている。曲線aは垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射におけるp偏光の透過を表し、更に曲線cは垂直入射における延伸方向に偏光された光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいてもp偏光の透過率が不均一であることに注目されたい。400nm~700nmにわたる曲線aの平均透過率は84.1%であり、一方、400nm~700nmにわたる曲線bの平均透過率は68.2%である。曲線cの平均透過率は9.1%である。曲線aに対する着色RMS%は1.4%であり、曲線bに対する着色RMS%は1.2%である。

実施例9 (PET CoPEN、449、偏光子)

キャストウェブを一回押出した後、実験用フィルム延伸機を用いてフィルムを 配向させることによって、449層を含む同時押出フィルムを作製した。一方の押 出機で、固有粘度0.60 d1/g(60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼ ン)のポリエチレンテレフ

タレート (PET) を毎時26ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、固有粘度0.5 3 (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のCoPEN (70モル%の2.6 NDCおよび30モル%のDMT)を毎時24ポンドの速度で送出した。PETをスキン層上に配置した。フィードブロック法を使用して57層を形成させ、これを三台のマルチブライヤーに通して449層の押出物を作製した。米国特許第3.565.985号には、類似の同時押出マルチプライヤーが記載されている。このキャストウェブは厚さ7.5ミル、幅12インチであった。この後、実験用延伸機を使用してウェブを一軸配向させた。この延伸機は、パントグラフを使用して矩形のフィルム片を把持し

、一様な速度で他方向を拘束したまま一方向に延伸する。7.46cmの矩形のウェブを約100℃で延伸機に充填し、60秒で120℃まで加熱した。次に、10%/sec(もとの寸法を基準に)で延伸を開始し、約5.0×1までサンプルを延伸した。延伸直後、このサンプルに室温の空気を吹き付けて冷却した。仕上がりフィルム厚は約1.4ミルであった。このフィルムは十分な接着性を有し、配向処理中に離層を起こすことはなかった。

図28は、この多層フィルムの透過性を示している。曲線aは垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射におけるp偏光の透過を表し、更に曲線cは垂直入射における延伸方向に偏光された光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいてもp偏光の透過率が非常に高いことに注目されたい。400nm~700nmにわたる曲線aの平均透過率は88.0%であり、また400nm~700nmにわたる曲線bの平均透過率は91.2%である。400nm~700nmにわたる曲線cの平均透過率は27.9%である。曲線aに対する着色RMS%は1.4%であり、曲線bに対する着色RMS%は4.8%である。

実施例10 (PEN:CoPEN、601、偏光子)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、601層を含む 同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.54 d1/g(60重量%のフェノール+40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート(PEN)を毎時75ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、CoPENを毎時65ポンドで送出した。coPENは、70モル%の2.6ナフタレンジカルボン酸メチルエステル、15%のジメチルイソフタレート、および15%のジメチルテレフタレートと、エチレングリコールとのコポリマーであった。フィードブロック法を使用して151層を形成させた。このフィードブロックは、光学層の厚さの比がPENに対して1.22またcoPENに対しては1.22となるような分布勾配を有する層を作製するようにデザインされた。PENスキン層を、光学積層の外側に全厚が押出層の8%となるように同時押出した。光学積層を二台の連続したマルチプライヤーを用いて多重化(multiply)した。このマルチプライヤーの公称多重化率(multiplication ratio)は、それぞれ1.2および1.27であった。続いて、約310°Fまで約40秒間フィルムを予備

加熱し、毎秒約6%の速度で横方向に延伸して延伸比を約5.0とした。仕上がりフィルム厚は約2ミルであった。

図30は、この多層フィルムの透過性を示している。曲線aは垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射におけるp偏光の透過を表し、更に曲線cは垂直入射における延伸方向に偏光された光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいてもp偏光の透過率が非常に高いことに注目されたい(80%~100%)。また、曲線cで示されるように可視領域(400nm~700nm)において延伸方向に偏光された光の消光率が非常に高いことにも注目されたい。消光率は、500nmから650nmの間では100%に近い。

実施例11 (PEN:sPS、481、偏光子)

-- 60重量%のフェノールおよびEastman Chemicalsから購入した40重量%のジクロロベンゼン中で測定した固有粘度が0.56 d1/gであるポリエチレンナフタレート (PEN) およびシンジオタクチックポリスチレン (sPS) ホモポリマー (重量平均分子量=200.000ドルトン、Dow Corporationからサンプル入手) から481層の多層フィルムを作製した。PENを外層上に配置して毎時26ポンドで押出し、sPSを毎時23ポンドで押出した。フィードブロックを使用して61層を形成し、この61層がそれぞれほぼ同じ厚さになるようにした。フィードブロックの後、三台(2×)のマルチプライヤーを使用した。最後のマルチプライヤーにかけた後、フィードブロックに供給したものと同じPENを含む等しい厚さのスキン層を合計で毎時22ポンドの速度で追加した。幅12インチのダイを介してウェブを押出し、厚さ約0.011インチ (0.276mm) にした。押出温度は290℃であった。

このウェブを大気条件下で9日間保存し、次に、幅出機を用いて一軸延伸した。約320° F (160°C) まで約25秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約28%の速度で横方向に延伸して延伸比を約6:1とした。延伸方向の緩和は行わなかった。仕上がりフィルム厚は約0.0018インチ (0.0046mm) であった。

図31は、481層を含むこのPEN:sPS反射偏光子の光学性能を示している。曲線a は垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射 におけるp偏光の透過を表し、更に曲線cは垂直入射における延伸方向に偏光され た光の透過を表している。垂直入射および60°入射のいずれにおいてもp偏光の透過率が非常に高いことに注目されたい。400nm~700nmにわたる曲線aの平均透過率は86.2%であり、400nm~700nmにわたる曲線bの平均透過率は79.

7%である。また、曲線cで示されるように可視領域(400nm~700nm)において延伸方向に偏光された光の消光率が非常に高いことにも注目されたい。このフィルムは、400nmから700nmの間で曲線cに対して1.6%の平均透過率を有する。曲線aに対する着色RMS%は3.2%であり、一方、曲線bに対する着色RMS%は18.2%である。 実施例12 (PET:Ecde 1、601、鏡)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、601層を含む 同時押出フィルムを作製した。固有粘度0.6 d1/g(60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンテレフタレート(PET)を毎時75ポンドの速度でフィードブロックへ送出し、またEcdel 9967(Eastman Chemicalから入手可能な熱可塑性エラストマー)を毎時60ポンドの速度で送出した。PETをスキン層上に配置した。フィードブロック法を使用して151層を形成させ、これを二台のマルチプライヤーに通して601層の押出物を作製した。このマルチプライヤーの公称多重化率は、1.2(フィードブロックの次)および1.27であった。二つのスキン層を、毎時24ポンドの合計スループットで、最後のマルチプライヤーとダイの間で対称的に追加した。スキン層はPETから成り、フィードブロックへPETを供給するのと同じ押出機を用いて押出した。ウェブ温度を約205°Fにして長さ方向にウェブを延伸して延伸比を約3.3とした。続いて、約205°Fまで約35秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約9%の速度で横方向に延伸して延伸比を約3.3とした。次に、450°Fに設定された熱硬化オーブン中でフィルムの最大幅の約3%の緩和を行った。仕上がりフィルム厚は約0.0027インチであった。

このフィルムは図32に示されるような光学性能を呈した。透過率は曲線aとしてプロットされ、反射率は曲線bとしてプロットされて

いる。曲線bに対する視感反射率は91.5%である。 実施例13 (PEN:CoPEN、601、反射防止偏光子)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、601層を含む 同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.54 d1/g(60重量%の フェノール+40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート (PEN) を毎時75ポンドの速度で送出し、他方の押出機で、CoPENを毎時65ポンドで送出 した。coPENは、70モル%の2,6ナフタレンジカルボン酸メチルエステル、30%のジ メチルテレフタレートと、エチレングリコールとのコポリマーであった。フィー ドブロック法を使用して151層を形成させた。PENスキン層を、光学積層の外側に 全厚が押出層の8%となるように同時押出した。このフィードブロックは、149層 の光学積層の層厚に直線勾配をもたせ、最も薄い層が積層の一方の側にくるよう にデザインされた。各層対が等しい厚さのPEN層およびcoPEN層を形成するように 、個々の層の厚さを対ごとにデザインした。各対の厚さdは、式d=do+do\*0.003 ----\*nにより決定した。ただし、doは対の厚さの最小値であり、nは1から75の間の対 の数である。光学積層を二台の連続したマルチプライヤーを用いて多重化した。 このマルチプライヤーの公称多重化率は、それぞれ1.2および1.27であった。続 いて、約320°Fまで約40秒間フィルムを予備加熱し、毎秒約6%の速度で横方向 に延伸して延伸比を約5.0とした。仕上がりフィルム厚は約2ミルであった。

次に、反射偏光子フィルムの一方の面にシリカゾルゲルコーティングを施した。このコーティングの屈折率はおよそ1.35であった。ARコート反射偏光子フィルムを二枚に切断し、この二枚をARコーティングが外側にくるように互いにラミネートした。横方向および平

行方向の偏光の透過スペクトルを得た。次に、このサンプルを重フッ化アンモニウム (NH4HF2) の2%脱イオン水溶液で洗浄してARコーティングを除去した。次に、コーティングを施したサンプルと比較するために、このコーティングなしの多層のスペクトルを測定した。

図33は、コーティングのある偏光子とない偏光子のスペクトルを示している。 曲線aおよびbはそれぞれ、ARコート反射偏光子の透過率および消光率を示してお り、曲線cおよびdはそれぞれ、コーティングなしの反射偏光子の透過率および消 光率を示している。消光スペクトルは本質的には変化しないが、ARコート偏光子 の透過率の値はほぼ10%高くなることに注目されたい。ピークゲインは、565nmに おける9.9%であり、一方、425nmから700nmの間の平均ゲインは、9.1%であった。 ARコート偏光子のピーク透過率は、675nmにおける97.0%であった。400nm~700nm にわたる曲線aの平均透過率は95.33%であり、また400nm~700nmにわたる曲線dの 平均透過率は5.42%である。

実施例14 (PET:Ecde1、601、偏光子)

同時押出工程を介した逐次フラットフィルム製造ラインにより、601層を含む
同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.6 d1/g(60重置%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンテレフタレート(PET
)を毎時75ポンドの速度でフィードブロックへ送出し、他方の押出機で、Ecde l
9967(Eastman Chemicalから入手可能な熱可塑性エラストマー)を毎時60ポンド
の速度でフィードブロックへ送出した。PETをスキン層上に配置した。フィード
ブロック法を使用して151層を形成させ、これを二台(2×)のマルチプライヤー
に通して601層の押出物を作製した。毎時50ポンドのスループットでPET押出機か
ら側流を取り出し、これを使用して、最後のマルチプライヤーとダイの間で二つ
のスキン層を追加

した。ウェブ温度を約205°Fにして長さ方向にウェブを延伸して延伸比を約5.0 とした。このフィルムの幅出しは行わなかった。仕上がりフィルム厚は約2.7ミルであった。

図34は、このフィルムの透過性を示している。曲線aは、延伸方向に偏光された光の透過率を表し、一方、曲線bは、延伸方向に直角に偏光された光の透過率を表している。曲線aに対する400nm~700nmの平均透過率は、39.16%である。 実施例15 (PEN:CoPEN、449、偏光子)

キャストウェブを一回押出した後、実験用フィルム延伸機を用いてフィルムを配向させることによって、449層を含む同時押出フィルムを作製した。一方の押出機で、固有粘度0.53 d1/g (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のポリエチレンナフタレート (PEN) を毎時26.7ポンドの速度でフィードプロックへ送出し、第二の押出機で、異なる材料を毎時25ポンドの速度でフィード

ブロックへ送出した。PENがスキン層であった。フィードブロック法を使用して5 7層を形成させ、これを三台のマルチプライヤーに通して449層の押出物を作製した。このキャストウェブは厚さ0.0075ミル、幅12インチであった。この後、実験用延伸機を使用してウェブを一軸配向させた。この延伸機は、パントグラフを使用して矩形のフィルム片を把持し、一様な速度で他方向を拘束したまま一方向に延伸する。7.46cmの矩形のウェブを約100℃で延伸機に充填し、60秒で140℃まで加熱した。次に、10%/sec(もとの寸法を基準に)で延伸を開始し、約5.5×1までサンプルを延伸した。延伸直後、このサンプルに室温の空気を吹き付けて冷却した。

第二の押出機への供給物は、次のポリ(エチレンエステル)の三種の材料のペレットをプレンドすることによって変化させた。すなわ

ち、(i)固有粘度0.52 (60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のCo
PEN (70モル%の2.6-ナフタレンジカルボキシレートおよび30モル%のテレフタレート)、(ii)第一の押出機への供給物と同じ材料であるPEN、(iii)固有粘度0.95
(60重量%のフェノール/40重量%のジクロロベンゼン)のPET。

図35Aに示されているフィルムに対しては、第二の押出機への供給物は80重量%のCoPENおよび20重量%のPENであり、図35Bに示されているフィルムに対しては、第二の押出機への供給物は80重量%のCoPENおよび20重量%のPETであり、図35Cに示されているフィルムに対しては、第二の押出機への供給物はCoPENであった。

図35A、35B、および35Cは、これらの多層フィルムの透過性を示している。ここで、曲線aは垂直入射における非延伸方向に偏光された光の透過を表し、曲線bは60°入射における非延伸方向に偏光されたp偏光の透過を表し、更に曲線cは垂直入射における延伸方向に偏光された光の透過を表している。これらのフィルムの光レスポンスが第二の押出機から供給される層の化学組成に影響されることに注目されたい。図35Aの曲線cの平均透過率は43.89%であり、図35Bの曲線cの平均透過率は21.52%であり、更に図35Cの曲線cの平均透過率は12.48%である。従って、図35Aから図35Cの方向に消光率が減少する。

57層フィードブロックを使用した実施例では、すべての層の光学的厚さが一定

(550nmの1/4)となるようにデザインしたが、押出装置が原因で積層全体にわたって層厚にかたよりを生じたため、かなり帯域の広い光レスポンスが得られた。
151層フィードブロックを用いて作製した実施例では、可視スペクトルの一部を対象とする層厚分布を形成するようにフィードブロックをデザインした。次に、
米国特許第5,094,788号および同第5,094,793号に記載されているよ

うに、非対称マルチプライヤーを使用して、可視スペクトルのほとんどを対象と するように層厚分布を広げた。

好ましい実施態様を参照して本発明を説明してきたが、本発明の精神および範囲を逸脱することなしに、形態および詳細の変更を行えることは当業者には分かるであろう。

【図1】

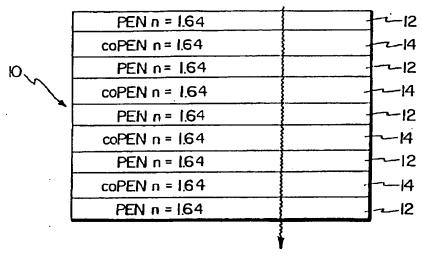


Fig. 1a

[図1b]

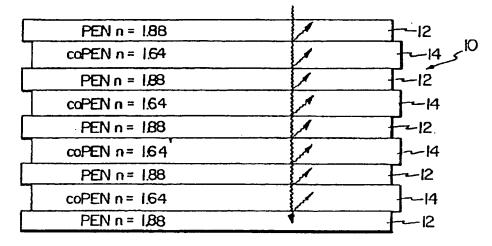
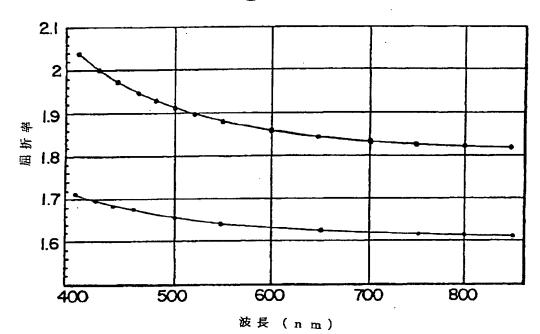


Fig. 1b

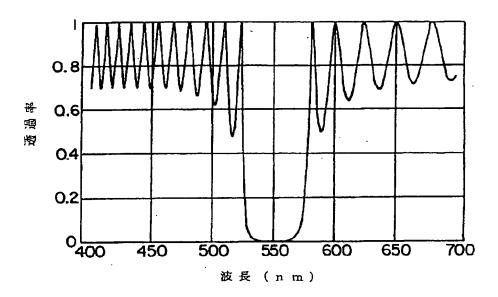
【図2】

Fig. 2

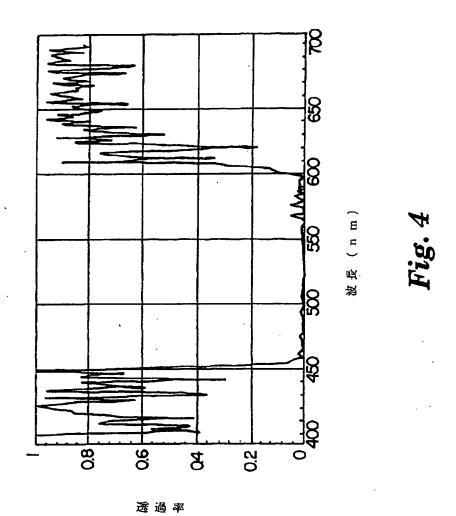


【図3】

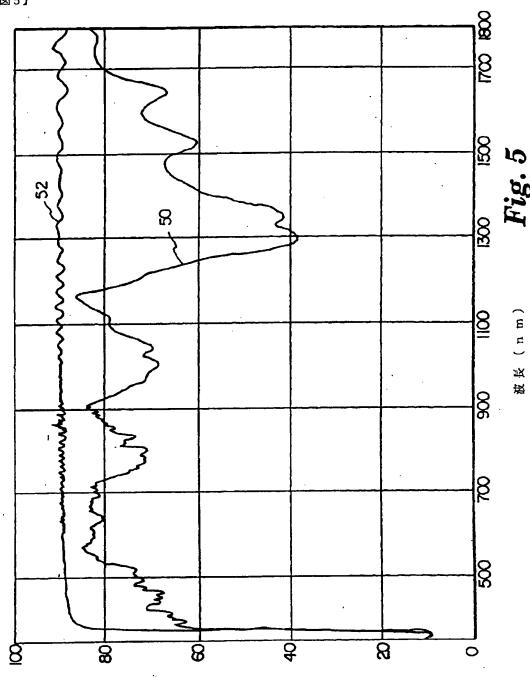
Fig. 3



【図4】

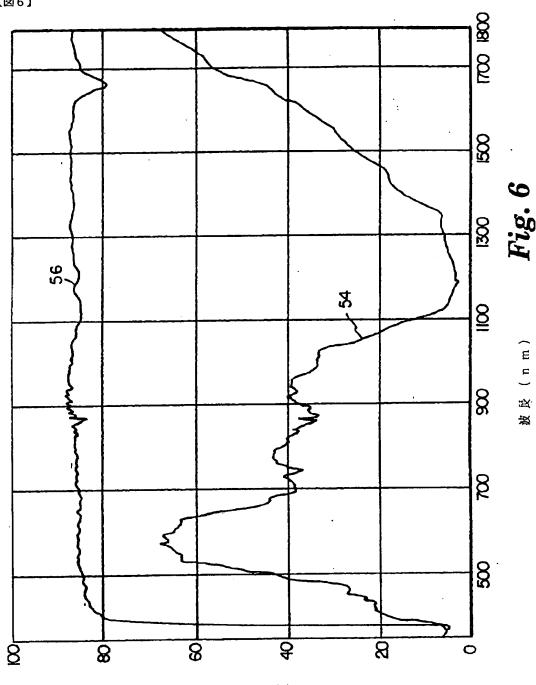






透過率(%)





透過率 (%)

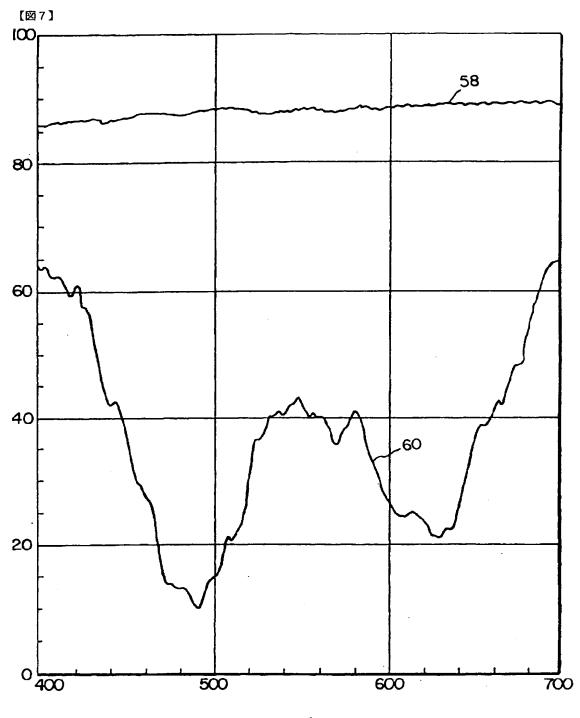
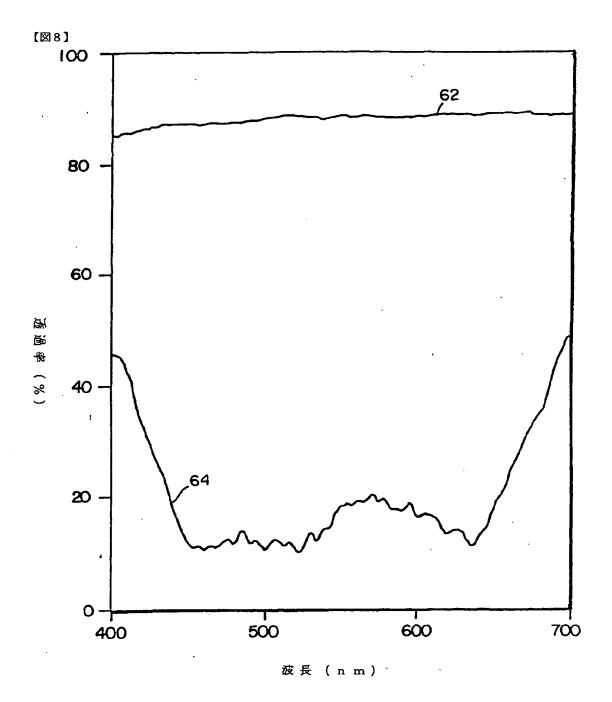


Fig. 7



**Fig.** 8

【図9】

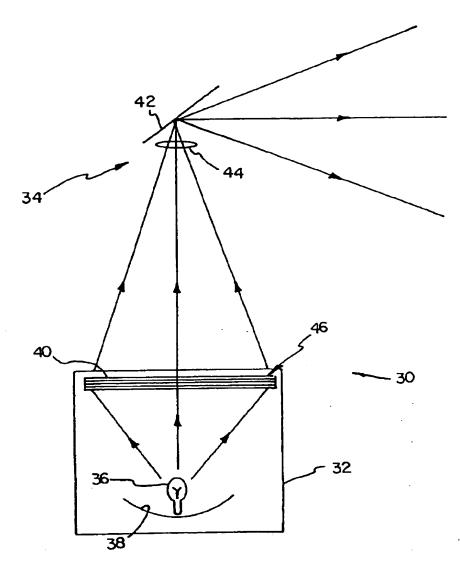
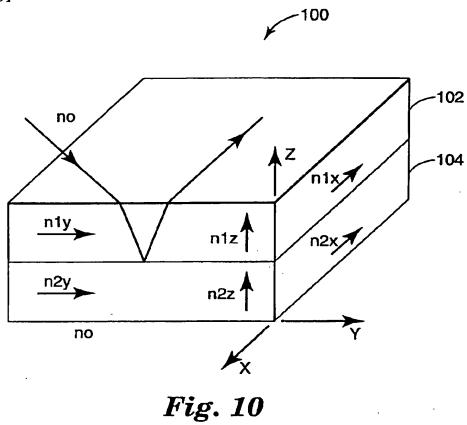


Fig. 9







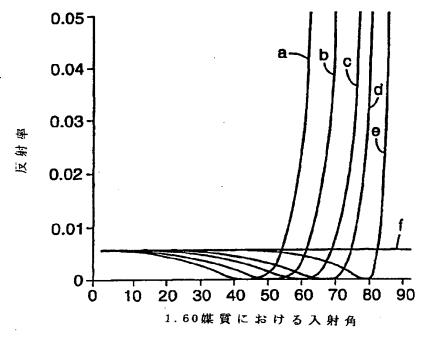


Fig. 11

[図12]

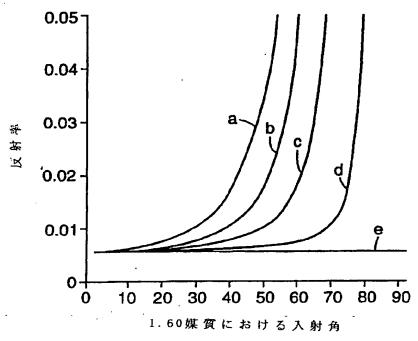
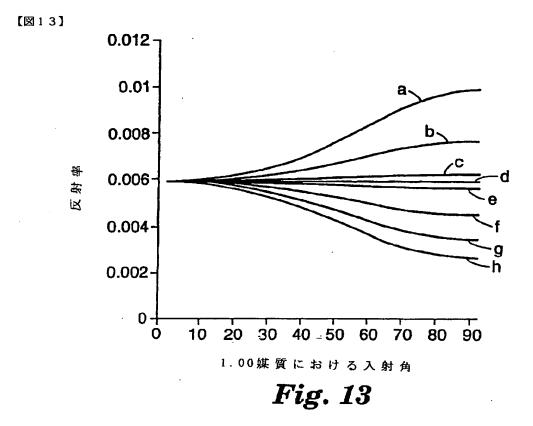


Fig. 12





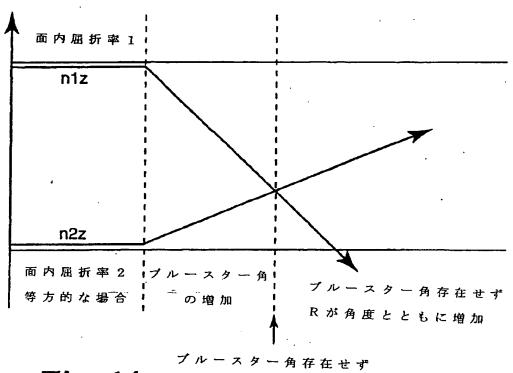
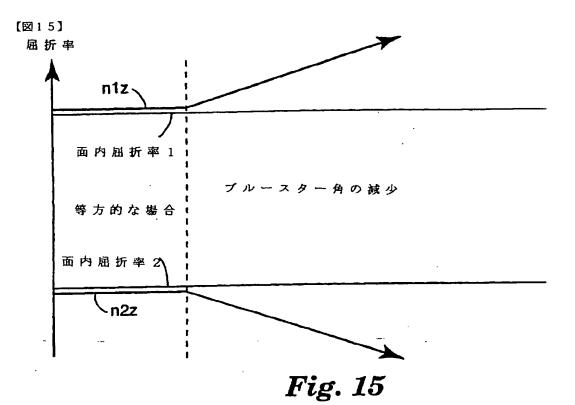


Fig. 14 R-定



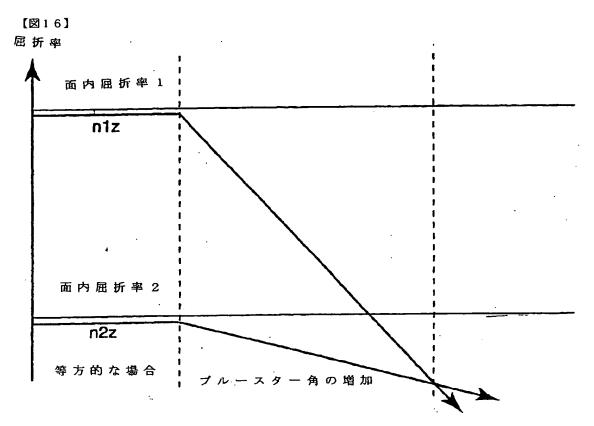
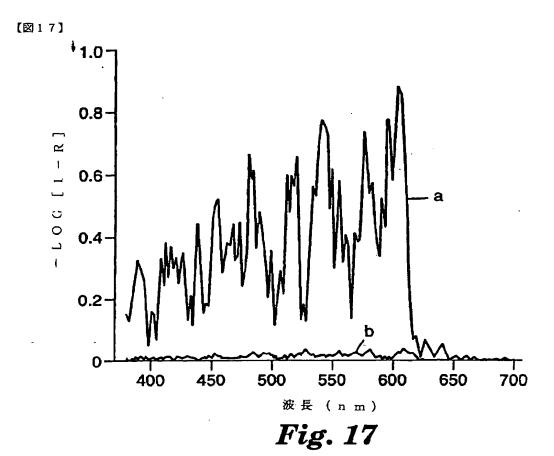
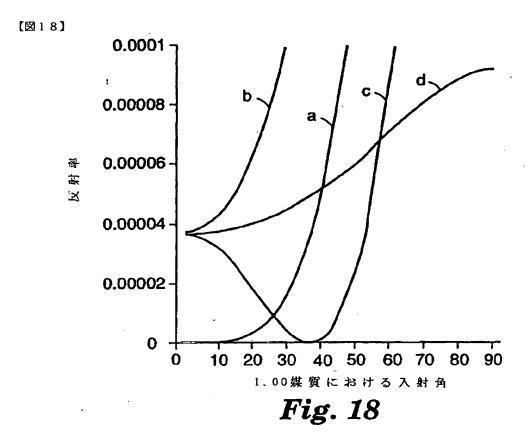
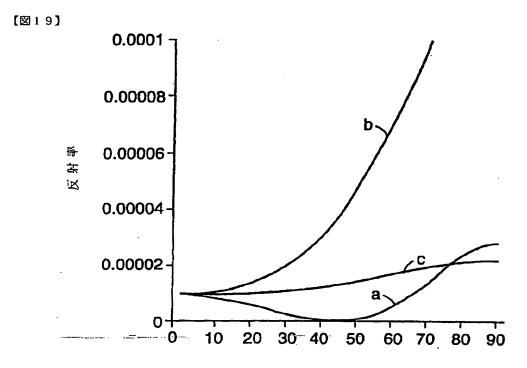


Fig. 16

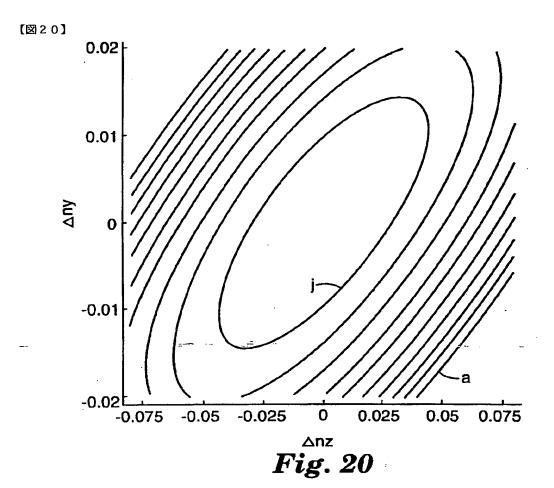


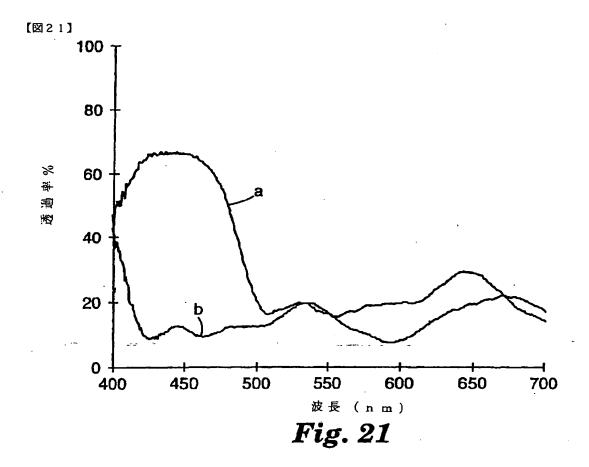


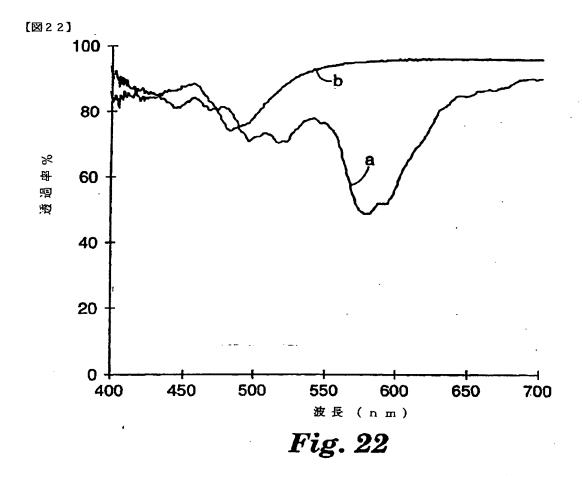


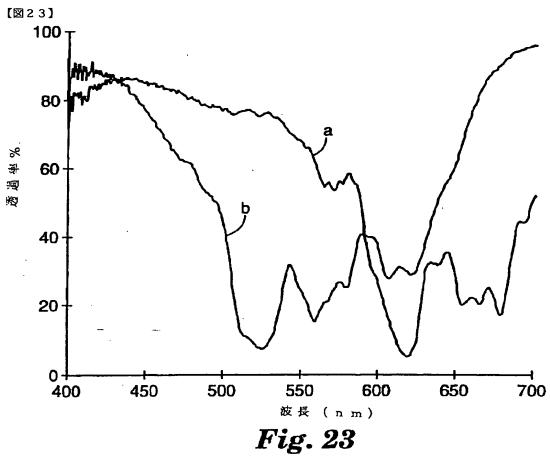
1.00媒質における入射角

Fig. 19









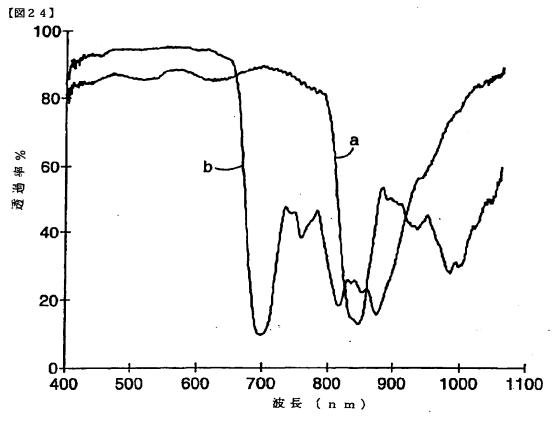


Fig. 24

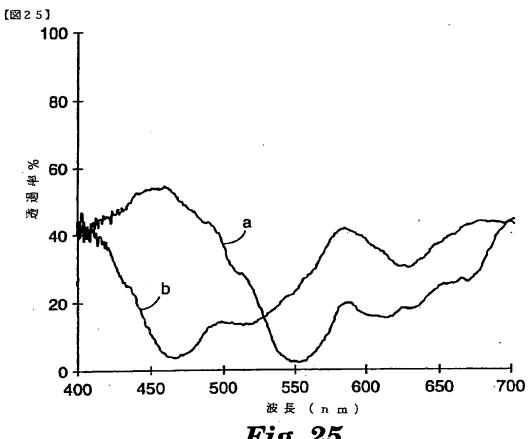
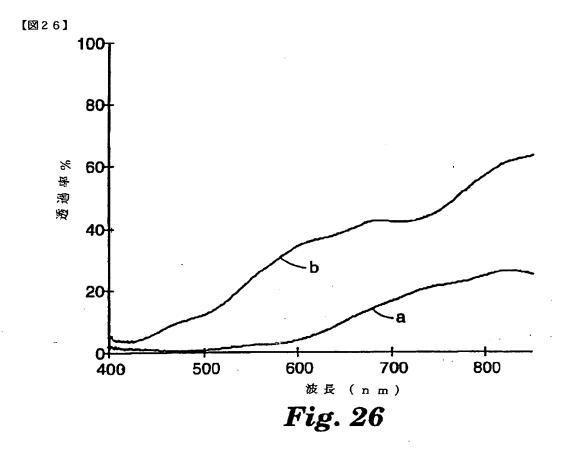
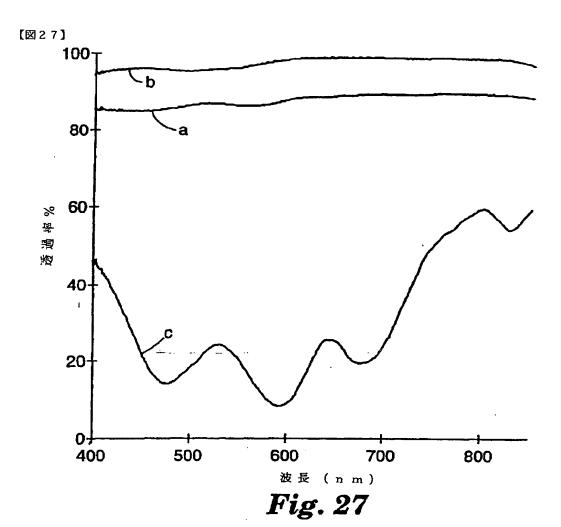
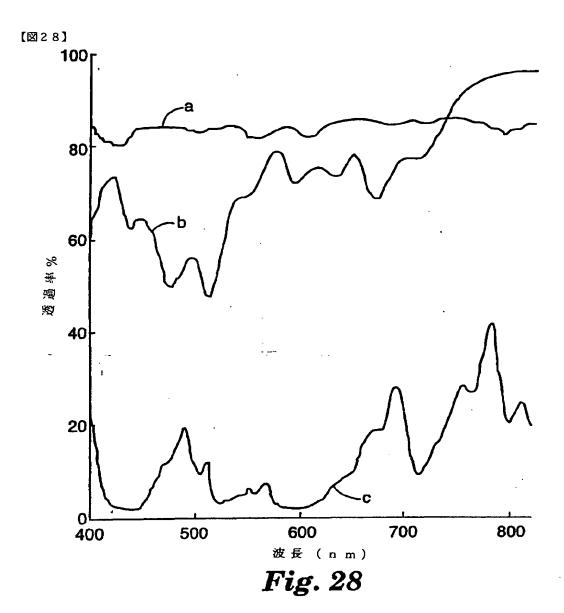
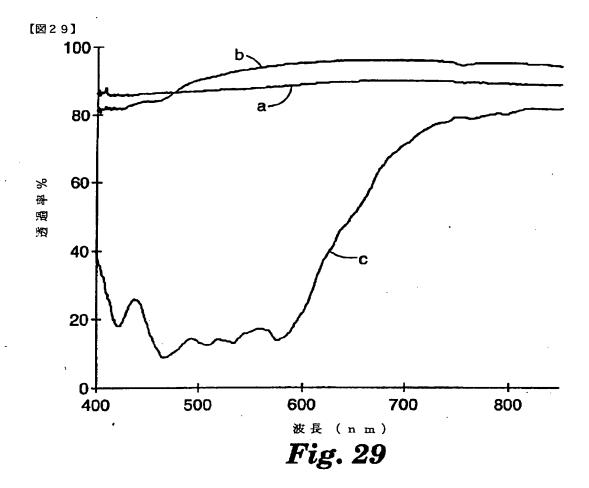


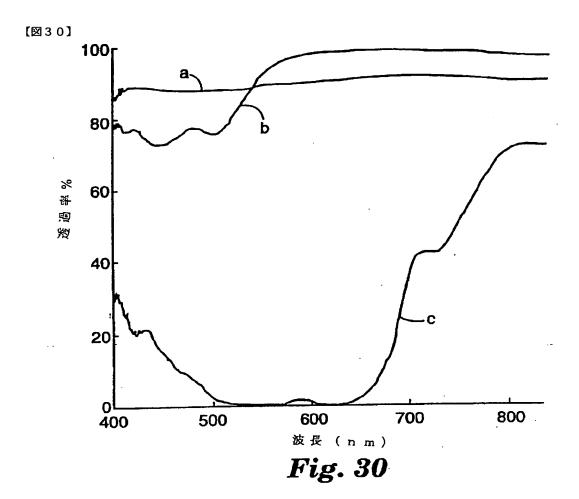
Fig. 25











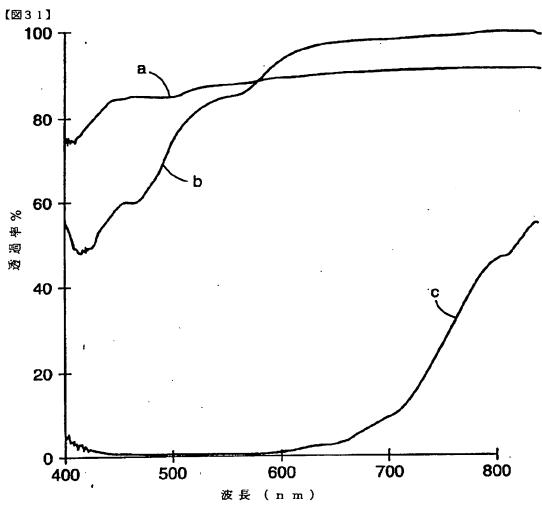
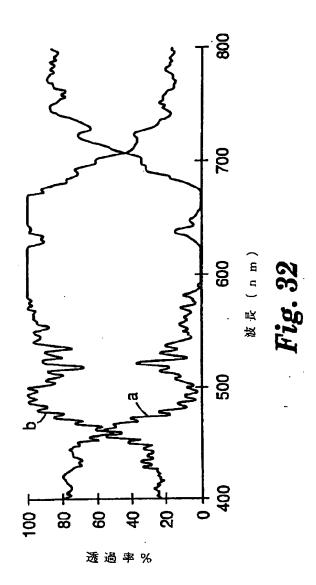


Fig. 31

[図32]



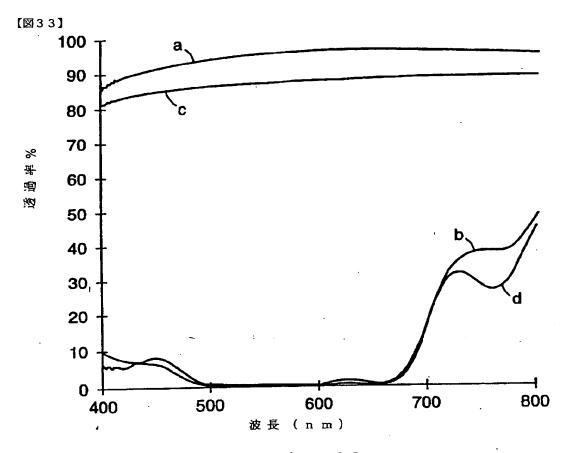


Fig. 33

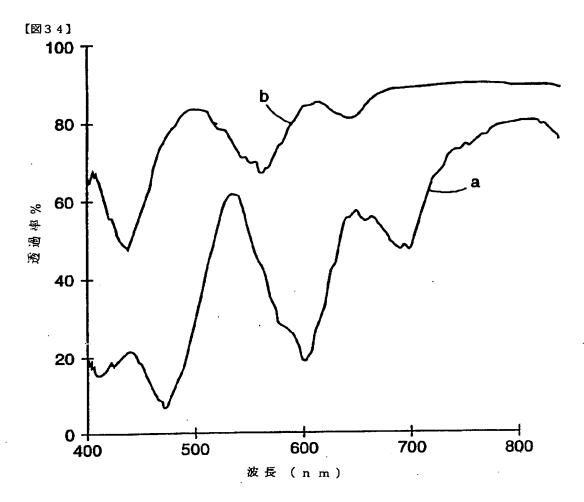
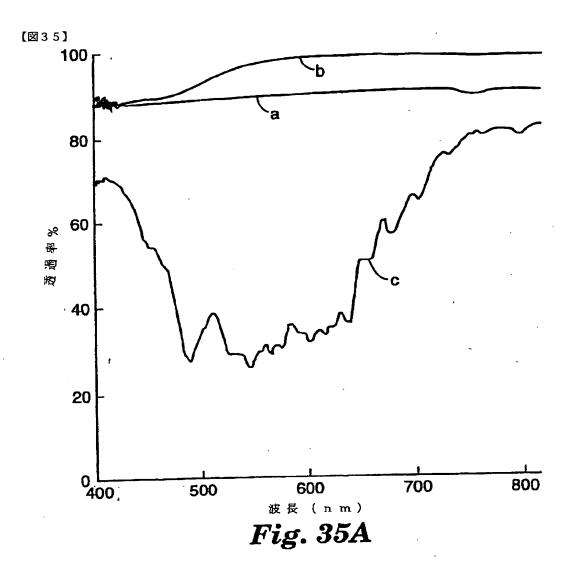
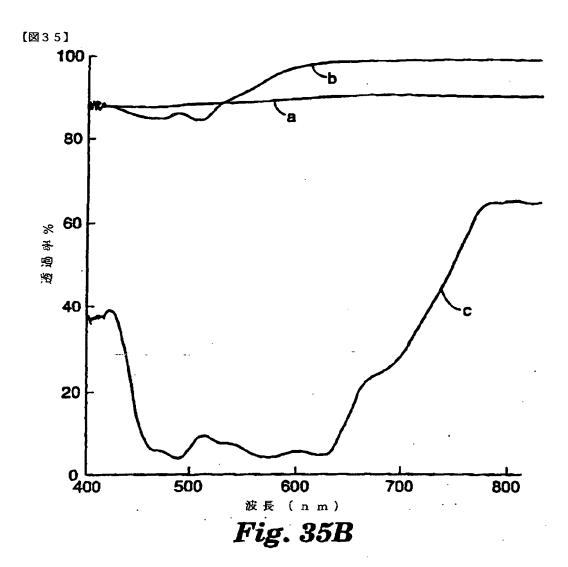
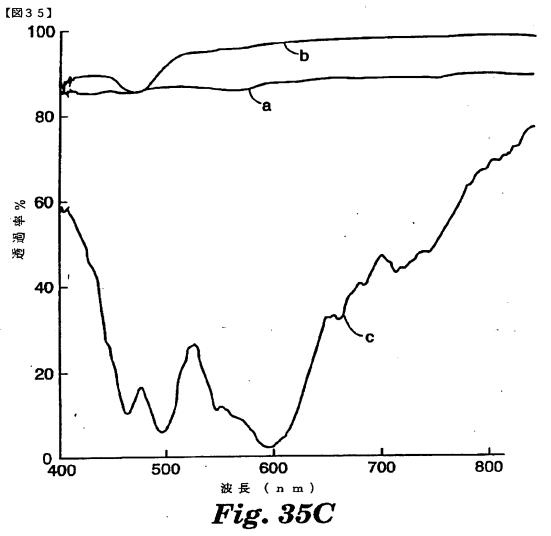


Fig. 34







# 【国際調査報告】

四水明点	INTERNATIONAL SEARC	H REPORT I		
		]	PCT/US 95	ication No ./16555
ÎPC 6	B32B7/92 B32B27/36 G02B5/3	1 9	,	, 2000
According	to International Patent Classification (IPC) or to both national class	ification and IPC		
	s searched			
IPC 6	iocumentation rearched (classification system followed by classification and the followed by classification system followed by classification system followed by classification and followed by classification system followed by classification sys	gori symbolis)		
Documents	tion searched other than minimum documentation to the extent that	such documents are inch	aded in the fields #	zarched
Electronic	ists base consulted during the international search (name of data base.	se and, where practical, s	rearch terms used)	
C. DOCUM	IENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		- <del></del>	
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the re	deveni passages		Relevant to claim No.
P,X	WD.A.95 17303 (MINNESOTA MINING A MANUFACTURING COMPANY) 29 June 19 see page 29, line 2 - page 30, li claims 1-9.11-17.20-27.31.43; fig	95 ne 26;		1-31
X	WO.A.94 10589 (THE DOW CHEMICAL C 11 May 1994 see page 12, line 20 - page 13, l figure 12			23,24, 26-31
Y	see page 21, line 12-20		1	1-22
γ	EP,A,O 488 544 (THE DOW CHEMICAL 3 June 1992	COMPANY)		1-20,22
Х	see column 11, line 7-16 see column 3, line 27-36; claims 4-7,9-11,19-29			23,24, 26-28,31
		/		
X Puro	ner documents are listed in the construction of box C.	X Patent family m	combors are listed in	1 SDDCZ.
-	ent defining the general state of the art which is not	T' later document publi or priority date and cited to understand	not in conflict will	the application but
filing	ared to be of particular relevances document but published on or after the international hate not which may throw doubts on priority daims(s) or	invention 'X' document of partieu cannot be considere inventive an inventive	d movel ar cannot (	laimed invention to considered to timent is taken alone
which chatics "O" docume other a	is cited to establish the publication date of another to or other special reason (as specified) not referring to an oral disclosure, use, exhibition or	Y' document of particul	lar relevance, the c d to involve an inv led with one or mon	aimed invention muve step when the re other such docu-
Luter th	an the pricing date datamed	& document member of Date of mailing of the		
	l May 1996	~	-06- 1996	
Name and n	making address of the ISA  European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Td. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ol, Fax (+31-70) 340-3016	Authorized officer  Derz, T	-	
- 200 014	318 (second sheet) Univ 1992)		<del></del>	

Ferm PCT/SA/216 (second sheet) (July 1992)

	INTERNATIONAL SEARCH REPORT	Inter( nal Application No PCT/US 95/16555
	tion) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category '	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Refevant to claim, No.
X Y	EP,A,0 404 463 (THE DOW CHEMICAL COMPANY) 27 December 1990 see page 6, line 42 - page 7, line 22; claims 1,13-17; examples 1-3,8,9 see page 8, line 28-39	23.24. 26-28.31 1-22
P,X	WO,A,95 17692 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 29 June 1995 see page 30, line 3 - page 32, line 18; claims 6-11; figures 31-34 see page 5, line 29 - page 7, line 7	1,3-22
P,X	WO,A,95 17691 (MINNESOTA MINING AND MANUFACTURING COMPANY) 29 June 1995 see page 26, line 6 - page 28, line 11; claims 7-10; figure 2 see page 5, line 1-28	1-31
		·
		·

Perm PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (July 1992)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internation on patent family members

PCT/US 95/16555

Patent document cited in search report	Publication date	Patent fr membe		Publication date
WO-A-9517393	29-06-95	AU-B-	1866395	10-07-95
WO-A-94105B9	11-05-94	AU-B- CM-A- EP-A- JP-T- US-A-	5322594 1088511 0666993 8503312 5448404	24-05-94 29-06-94 16-08-95 09-04-96 05-09-95
EP-A-488544	03-66-92	US-A- CA-A-	548 <b>6949</b> 2 <b>0</b> 561 <b>53</b>	23-01-96 27- <del>0</del> 5-92
EP-A-494463	27-12-90	AU-B- AU-B- CA-A- CH-A,B JP-A- NO-B- US-A- US-A- US-A- US-A- US-A-	622812 5758790 2019272 1048191 3041401 178723 5122905 5122906 5486949 5262894 5278694	16-04-92 03-01-91 20-12-90 02-01-91 21-02-91 12-02-96 16-06-92 23-01-96 16-11-93 11-01-94
WO-A-9517692	29-06-95	AU-B-	1443595	10-07-95
WO-A-9517691	29-06-95	NONE		

Form PCT/ISA/218 (petent family sanes) (July 1993)

### フロントページの続き

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(KE, LS, MW, SD, SZ, UG), AL, AM, AT, AU, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, HU, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, TJ, TM, TT, UA, UG, UZ, VN

(72)発明者 ウェバー,マイケル エフ. アメリカ合衆国、ミネソタ 55133-3427、 セント ポール、ポスト オフィス ボックス 33427

- (72)発明者 アウダーカーク、アンドリュー ジェイ ー アメリカ合衆国、ミネソタ 55133-3427 セント ポール、ポスト オフィス ボッ クス 33427
- (72)発明者 ストバー,カール エー アメリカ合衆国、ミネソタ 55133-3427、 セント ポール、ポスト オフィス ボックス 33427

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/010403

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl <sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335	
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC	
B. FIELDS SEARCHED	
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  Int.Cl <sup>7</sup> G02B5/30, G02F1/1335	·
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996	.–2004 5–2004
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms use	ed)
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
Category* Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages Rel	levant to claim No.
A JP 2000-506990 A (Minnesota Mining & Mfg. Co.), 06 June, 2000 (06.06.00), Full text; all drawings & WO 97/32224 Al & AU 9717523 A & US 5825543 A & EP 883821 Al & BR 9707791 A & CN 1212763 A & MX 9806884 Al & KR 99087312 A  A JP 2000-56133 A (Shojiro KAWAKAMI), 25 February, 2000 (25.02.00), Full text; all drawings & WO 00/08496 Al & JP 2001-83321 A & EP 1103829 Al	1-29
Further documents are listed in the continuation of Box C.   See patent family annex.	
* Special categories of cited documents:  "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance earlier application or patent but published on or after the international filing date  "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	at cited to understand in invention cannot be of involve an inventive invention cannot be then the document is
Date of the actual completion of the international search 19 October, 2004 (19.10.04)  Date of mailing of the international search report of the internation	
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office  Authorized officer	
Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)	

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2004/010403

Category*  Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  Relevant to cla  A				E RELEVANT	DOCUMENTS CONSIDERED TO BE	C (Continuation).
09 April, 1999 (09.04.99), Full text; all drawings (Family: none)  P,X JP 2003-227923 A (Nissan Motor Co., Ltd.), 15 August, 2003 (15.08.03), Full text; all drawings (Family: none)	o claim No.	Relevant				Category*
15 August, 2003 (15.08.03), Full text; all drawings (Family: none)	29			.99),	9 April, 1999 (09.04. Tull text; all drawing	
	29	1-	•	3.03),	5 August, 2003 (15.08 all text; all drawing	P,X
					= .	
		· .				
					·	
1			·			
		•			·	